



Etude de l'initiation de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins par des méthodes d'évaluation non-destructives ultrasonores

Nicolas Casiez

► To cite this version:

Nicolas Casiez. Etude de l'initiation de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins par des méthodes d'évaluation non-destructives ultrasonores. Matériaux. INSA de Lyon, 2015. Français. <NNT : 2015ISAL0031>. <tel-01339847>

HAL Id: tel-01339847

<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01339847>

Submitted on 30 Jun 2016

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Etude de l'initiation de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins par des méthodes d'évaluation non-destructives ultrasonores

Thèse présentée devant

L'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon

Pour obtenir

Le grade de docteur

Formation doctorale

- Microstructure et comportement mécanique et macroscopique des matériaux
- Génie des matériaux

Ecole doctorale

Ecole doctorale matériaux de Lyon

Par

Nicolas CASIEZ

Soutenue le 14 avril 2015 devant la commission d'examen

Jury

S. ANDRE	Professeur (Université de Lorraine)	Rapporteur
J. MOYSAN	Professeur (Université d'Aix-Marseille)	Rapporteur
J. WEISS	Directeur de recherche CNRS (Université J. Fourier, Grenoble)	Examineur
O. LAME	Professeur (INSA, Lyon)	Directeur de thèse
S. DESCHANEL	Docteur (INSA, Lyon)	Directrice de thèse
T. MONNIER	Docteur (INSA, Lyon)	Encadrant

Laboratoires de recherche : MATEIS et LVA, INSA de Lyon

Etude de l'initiation de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins par des méthodes d'évaluation non-destructives ultrasonores

RESUME

Les polymères semi-cristallins sont des matériaux très répandus dans notre vie quotidienne et sont utilisés dans une large gamme d'applications, généralement sous des sollicitations viscoélastiques. Par conséquent, nombreux sont les travaux de recherche qui ont été menés ces dernières années afin d'étudier leurs propriétés élastiques et leurs micro-mécanismes de plasticité ou d'endommagement apparaissant en leur sein à l'échelle locale (nano et micrométrique). Cependant, l'observation *in situ* de l'amorçage de ces mécanismes (cisaillement des cristallites, cavitation ou encore transformation martensitique) demeure problématique et requiert l'emploi d'équipements complexes. Dès lors, nous proposons d'utiliser des techniques d'analyse non destructives fondées sur la détection et la propagation d'ondes ultrasonores (US) afin d'obtenir de nouvelles informations sur l'initiation de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins. Plus précisément, nous avons utilisé les techniques de contrôle par ondes US et émission acoustique (EA) afin de caractériser la plasticité et l'endommagement de plusieurs Polyéthylènes (PE), d'un Polypropylène (PP) et d'un Polyfluorure de vinylidène (PVDF) lors d'essais de traction uniaxiale.

La technique de contrôle US a permis de montrer que l'atténuation US de différents types d'ondes (guidées et de volume) est élevée et augmente lorsque le taux de cristallinité du matériau diminue. Pour les ondes guidées, nous avons montré l'influence de la géométrie des éprouvettes ainsi que celle de la fréquence des ondes sur l'atténuation.

Lors d'un essai de traction, une importante modification des paramètres US est observée lors du passage dans le domaine plastique, traduisant l'évolution de l'état de la microstructure, en particulier celui du réseau cristallin. La formation de micro-cavités a un impact significatif sur l'atténuation des ondes. L'effet de l'orientation des chaînes macromoléculaires a également été mis en évidence.

L'activité acoustique des matériaux étudiés est faible mais il a été possible de vérifier que la majorité des signaux d'EA détectés proviennent bien des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement. L'effet de la vitesse de déformation est significatif et nous avons montré que la localisation de certains signaux est possible lorsque cette vitesse de déformation est élevée. L'activité acoustique présente trois phases au cours des essais de traction, ce qui nous a permis de proposer en conséquence un modèle de répartition des sources d'EA sur les éprouvettes. L'activité acoustique démarre toujours avant le seuil de plasticité montrant ainsi que des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement s'initient aux faibles déformations. La détection de signaux d'EA avant le seuil de plasticité dépend aussi du taux de cristallinité. Le nombre de signaux d'EA détectés ainsi que leur énergie augmentent avec le taux de cristallinité du matériau. Un critère de plasticité a donc été proposé. La corrélation entre les signaux d'EA et les mécanismes sous-jacents est complexe, cependant il semblerait que la cavitation, la rupture des lamelles cristallines ainsi que la transformation martensitique soient toutes trois à l'origine de la libération d'énergie acoustique.

MOTS-CLÉS : Déformation plastique, Emission acoustique, Contrôle ultrasonore, Atténuation

Study of the initiation of plasticity and damage of semi-crystalline polymers by ultrasonic non-destructive evaluation methods

ABSTRACT

Semi-crystalline polymers are widely used materials in our everyday life and in a large range of applications, generally under visco-elastic solicitations. Consequently, many of the recent years researches study their elastic properties and their plasticity or damage micro-mechanisms occurring at a local scale (nano and micrometer). However, *in situ* observations of the initiation of these mechanisms (e.g. shear crystallites, cavitation or martensitic transformation) remain problematic and require the use of complex devices. Therefore, we propose to use non-destructive evaluation techniques based on the detection and the propagation of ultrasonic (US) waves in order to obtain new information about the initiation of plastic deformation and damage of semi-crystalline polymers. More specifically, we have used US and acoustic emission (AE) techniques to characterize the plasticity and damage of several Polyethylenes (PE), a Polypropylene (PP) and a Polyvinylidene fluoride (PVDF) during tensile tests.

The US monitoring technique showed that the US attenuation of several waves is high and increases when the degree of crystallinity of the material decreases. For guided waves, we showed the effect of the specimens' geometry and the waves frequency on the US attenuation. A significant change of US parameters is observed at the elastic-plastic transition, reflecting changes in the microstructure's state, in particular in the crystal network. The formation of micro-cavities has a significant impact on the attenuation. The effect of the orientation of macromolecular chains has also been highlighted.

The acoustic activity of studied materials is weak but the majority of detected AE signals have been shown to actually originate from plasticity and damage micro-mechanisms. The effect of the strain rate is significant and we have shown that the localization of few signals is possible when the strain rate is high. The acoustic activity presents three phases during tensile tests, which allowed us to propose a model based on the distribution of AE sources on the specimens. The acoustic activity always starts before the yield point showing that plasticity and damage micro-mechanisms are initiated at small strains. The detection of AE signals before the yield point also depends on the crystallinity of the material. The number of AE signals and their energy increase with the degree of crystallinity. A plastic criterion has been proposed. The correlation between the acoustic signals and the different mechanisms is complex, however it seems that the cavitation, the breakage of crystalline lamellae and the martensitic transformation are responsible for the release of acoustic energy.

KEYWORDS: Plastic deformation, Acoustic emission, Ultrasonic testing, Attenuation

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE	13
------------------------------------	-----------

CHAPITRE I

ETAT DE L'ART: MICROSTRUCTURE ET MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT DES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS, ET METHODES D'EVALUATION NON-DESTRUCTIVES ULTRASONORES

1. SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LA MICROSTRUCTURE, LES PROPRIETES MECANQUES ET LES MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT DES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS	19
1.1. INTRODUCTION	19
1.2. MICROSTRUCTURE ET MORPHOLOGIE	20
1.2.1. <i>Chaine macromoléculaire</i>	20
1.2.2. <i>Maille cristalline</i>	21
1.2.3. <i>Structures lamellaires</i>	22
1.2.3.1. <i>Lamelles cristallines</i>	22
1.2.3.2. <i>Lamelles amorphes</i>	22
1.2.4. <i>Empilement lamellaire</i>	23
1.2.5. <i>Agrégats polycristallins</i>	23
1.3. CRISTALLISATION ET TRAITEMENTS THERMIQUES	24
1.3.1. <i>Cristallisation</i>	24
1.3.1.1. <i>Germination</i>	24
1.3.1.2. <i>Croissance</i>	25
1.3.2. <i>Traitements thermiques</i>	25
1.3.2.1. <i>Trempe</i>	25
1.3.2.2. <i>Traitement isotherme</i>	26
1.4. MECANISMES DE DEFORMATION DES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS EN TRACTION	26
1.4.1. <i>Comportement élastique et anélastique</i>	27
1.4.2. <i>Écoulement plastique</i>	28
1.4.2.1. <i>Cisaillement des cristallites</i>	28
1.4.2.2. <i>Cavitation</i>	29
1.4.2.3. <i>Transformation martensitique</i>	31
1.4.3. <i>Durcissement et rupture</i>	31
1.5. BESOINS POUR LA CARACTERISATION DE L'INITIATION DE LA DEFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT	32

2. ÉVALUATION NON-DESTRUCTIVE DE LA DEFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT DE MATERIAUX	32
2.1. INTRODUCTION	32
2.2. SUIVI DE LA DEFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT PAR DES METHODES ULTRASONORES	33
2.2.1. Émission acoustique	33
2.2.2. Contrôle par ultrasons.....	33
2.3. PROPAGATION DES ONDES ULTRASONORES DANS LES MILIEUX ELASTIQUES.....	34
2.3.1. Ondes de volume.....	34
2.3.2. Ondes de surface.....	35
2.3.3. Ondes de plaque	35
2.4. ATTENUATION.....	36
2.4.1. Diffusion	37
2.4.2. Absorption.....	38
3. APPLICATIONS AUX MATERIAUX POLYMERES SEMI-CRISTALLINS.....	39
3.1. ÉMISSION ACOUSTIQUE	39
3.1.1. Cristallisation	39
3.1.2. Suivi de la déformation plastique et de l'endommagement.....	40
3.2. CONTROLE PAR ULTRASONS	42
3.2.1. Propagation et atténuation des ondes US	42
3.2.2. Suivi de la déformation plastique et de l'endommagement.....	44
4. CONCLUSIONS ET OBJECTIFS DE LA THESE	46

CHAPITRE II

TECHNIQUES ET MATERIAUX

1. TECHNIQUES	51
1.1. ANALYSE MICROSTRUCTURALE: ANALYSE ENTHALPIQUE DIFFERENTIELLE	51
1.1.1. Définition	51
1.1.2. Instrumentation et protocole expérimental.....	52
1.2. ESSAIS MECANQUES: TRACTION	52
1.2.1. Instrumentation.....	52
1.2.2. Éprouvette de traction	52
1.3. TECHNIQUES D'ÉVALUATION NON DESTRUCTIVES	53
1.3.1. Émission acoustique	53
1.3.2. Contrôle ultrasonore	59
1.3.2.1. Définition	59
1.3.2.2. Instrumentation	60

1.3.2.3. Signaux générés	60
1.3.2.4. Capteurs et couplage	61
1.3.2.5. Dispositifs expérimentaux.....	62
1.3.2.6. Mesure de la vitesse de phase	63
1.3.2.7. Mesure de l'atténuation	66
2. MATERIAUX.....	70
2.1. CHOIX DES MATERIAUX	70
2.1.1. Polyéthylène.....	71
2.1.2. Polypropylène	71
2.1.3. Polyfluorure de vinylidène.....	71
2.2. ÉLABORATION: TRAITEMENTS THERMIQUES	71
2.2.1. Trempe	72
2.2.2. Traitement « isotherme »	72
2.3. MECANISMES DE FORMATION DE LA CAVITATION.....	75
3. CONCLUSION.....	75

CHAPITRE III

SUIVI DE LA DEFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT DE POLYMERES SEMI-CRISTALLINS PAR LA TECHNIQUE DE CONTROLE ULTRASONORE

1. INTRODUCTION.....	79
2. COMPORTEMENT DES ONDES US SOUS SOLlicitATIONS VISCOELASTIQUES	80
2.1. RAPPEL DES DIFFERENTS TYPES D'ONDES.....	80
2.2. MODIFICATIONS DU SIGNAL : DU GENERATEUR AU RECEPTEUR	81
2.3. ONDES GUIDEES	83
2.3.1. Effets de la distance de propagation sur les paramètres US.....	83
2.3.2. Facteurs influençant l'atténuation	85
2.4. ONDES DE VOLUME.....	90
2.4.1. Atténuation.....	90
2.4.2. Vitesse.....	91
2.4.3. Constantes élastiques.....	92
3. SUIVI DE LA DÉFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT DE PE PAR ONDES US LORS D'ESSAIS DE TRACTION.....	94
3.1. RAPPEL DES DIFFÉRENTS MÉCANISMES DE PLASTICITÉ ET D'ENDOMMAGEMENT.....	94
3.2. EVOLUTION DES PARAMETRES US LORS D'UN ESSAI DE TRACTION SUR UN DES POLYMERES ETUDIES, LE PE D _{QUE}	95

3.2.1. Suivi des paramètres des ondes guidées	95
3.2.2. Suivi des paramètres des ondes longitudinales	98
3.2.2.1. Essai de traction continu	98
3.2.2.2. Essai de traction arrêté	100
3.3. INFLUENCE GEOMETRIQUE DE LA STRICTION ET DES MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT SUR LA PROPAGATION DES ONDES US	103
3.3.1. Ondes guidées	103
3.3.1.1. Influence géométrique de la striction	103
3.3.1.2. Influence de l'orientation des chaînes	104
3.3.2. Ondes longitudinales	105
3.3.2.1. Influence du taux de cristallinité	105
3.3.2.2. Influence de la cavitation	107
3.3.2.3. Influence de l'orientation des chaînes	108
4. COMPORTEMENT DES ONDES US DANS D'AUTRES POLYMERES SEMI- CRISTALLINS.....	109
4.1. POLYPROPYLENE.....	110
4.2. POLYFLUORURE DE VINYLIDENE	111
5. CONCLUSION.....	113

CHAPITRE IV

SUIVI DE LA DEFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT DE POLYMERES SEMI-CRISTALLINS PAR LA TECHNIQUE D'EMISSION ACOUSTIQUE

1. INTRODUCTION.....	117
2. ÉTUDES PRELIMINAIRES	118
2.1. CONDITIONS D'ACQUISITION D'UN SIGNAL D'EA	118
2.2. IDENTIFICATION PREALABLE DES SOURCES POSSIBLES D'EA	120
2.3. OBSERVATIONS DE L'ACTIVITE ACOUSTIQUE AU COURS D'UN ESSAI DE TRACTION.....	121
2.4. PRE-CYCLES	123
2.5. IDENTIFICATION DE L'ORIGINE DES SIGNAUX	124
2.5.1. Éprouvette haltère	124
2.5.2. « Anti-éprouvette »	125
2.5.3. Comparaison de l'activité acoustique.....	125
3. ANALYSE DU COMPORTEMENT DE L'ACTIVITE ACOUSTIQUE D'UN DES POLYMERES ETUDIES, LE PE DQUE.....	127

3.1. RAPPELS SUR LES MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT	127
3.1.1. Cavitation	128
3.1.2. Cisaillement et fragmentation des lamelles cristallines	128
3.1.3. Transformation martensitique	129
3.1.4. Rupture des fibrilles.....	129
3.2. EFFET DE LA VITESSE DE DEFORMATION	129
3.3. EVOLUTION DU NOMBRE CUMULE DE SIGNAUX D'EA AU COURS DES ESSAIS DE TRACTION.....	131
3.4. ANALYSE DES PARAMETRES DES SIGNAUX D'EA	133
4. EFFET DE LA MICROSTRUCTURE SUR L'ACTIVITE ACOUSTIQUE	135
4.1. INFLUENCE DU TAUX DE CRISTALLINITE	135
4.2. ANALYSE DES PARAMETRES DES SIGNAUX D'EA	137
4.2.1. Durée et fréquence moyenne	137
4.2.2. Énergie.....	138
4.3. LOCALISATION	142
4.4. INITIATION DE L'ACTIVITE ACOUSTIQUE.....	145
5. ACTIVITE ACOUSTIQUE D'AUTRES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS	148
5.1. POLYPROPYLENE.....	148
5.2. POLYFLUORURE DE VINYLIDENE	149
6. CONCLUSION.....	150
 CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES.....	153
 REFERENCES	157

INTRODUCTION GENERALE

Les matériaux plastiques présentent l'avantage d'être légers, peu onéreux, facilement usinables mais surtout d'avoir des propriétés chimiques et physiques et en particulier mécaniques intéressantes. Parmi ces plastiques, les polymères semi-cristallins apparaissent dans de nombreuses applications industrielles comme par exemple les emballages alimentaires, les tableaux de bords des voitures, les tuyauteries des canalisations ou encore les vêtements. Ces matériaux sont généralement employés sous des sollicitations viscoélastiques dans des domaines variés nécessitant des conditions d'utilisations spécifiques. C'est pourquoi, ils ont fait l'objet de nombreuses études ces dernières années afin d'acquérir une meilleure connaissance de leurs propriétés et des différents mécanismes apparaissant en leur sein sous sollicitations mécaniques. Cependant, la microstructure de ces matériaux est organisée en plusieurs échelles ce qui complexifie leur étude, en particulier la détection *in situ* de l'amorçage à l'échelle locale des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement tels que le cisaillement ou la fragmentation des lamelles cristallines, la cavitation ou encore la transformation martensitique. En effet, lors d'un essai de traction, plusieurs mécanismes apparaissent simultanément au sein de ces matériaux conduisant ainsi à une importante modification de leur microstructure et de leurs propriétés élastiques. Par conséquent, l'observation directe de la zone plastique est difficile et nécessite l'emploi de techniques d'analyse complexes et très coûteuses.

Afin de s'affranchir de ces problèmes, les méthodes d'évaluations non destructives fondées sur la propagation et la détection d'ondes acoustiques s'avèrent être des méthodes alternatives efficaces pour caractériser les propriétés élastiques et étudier la déformation plastique, l'endommagement et la rupture des matériaux. Parmi ces méthodes, nous pouvons citer les techniques de contrôle ultrasonore (US) et d'émission acoustique (EA). Ces techniques présentent de nombreux avantages comme par exemple d'être faciles à mettre en œuvre, peu onéreuses, sans danger pour les utilisateurs; les équipements sont légers ou encore permettent d'étudier un matériau sans préparation particulière. La technique de contrôle US permet d'étudier un matériau par la génération d'ondes entièrement contrôlées et reproductibles. Les paramètres de ces ondes dépendant directement des propriétés élastiques du milieu permettant ainsi de rendre compte de modifications structurales du matériau. En outre, des mécanismes de plasticité et d'endommagement libèrent de l'énergie acoustique, source d'ondes transitoires, au sein d'un matériau soumis à des sollicitations mécaniques. La technique d'EA consiste à détecter ces ondes et à relier leur signature acoustique aux différents types de mécanismes sources. Ainsi, ces techniques permettent d'obtenir en temps réel des informations sur l'évolution de l'état de la microstructure de matériaux sous sollicitations. Toutefois, elles ont rarement été utilisées pour l'étude de la déformation plastique et l'endommagement de polymères semi-cristallins de par la forte atténuation des ondes US en leur sein.

L'objectif principal de cette thèse est d'obtenir de nouvelles informations sur l'initiation de la plasticité et de l'endommagement dans des polymères semi-cristallins au cours d'essais de traction à l'aide des techniques de contrôle US et d'EA. Pour cela, nos investigations ont été essentiellement menées sur des Polyéthylènes (PE) présentant des paramètres microstructuraux variés. Toutefois, des essais ont également été effectués sur un Polypropylène (PP) et un Polyfluorure de vinylidène (PVDF). Les PE et le PP ont été soumis à des traitements thermiques afin de modifier leur microstructure et avoir à notre disposition notamment des PE présentant une large gamme de taux de cristallinité. Les mesures US ont permis d'acquérir une meilleure compréhension de la propagation des ondes, de fréquence comprise dans le domaine classique de l'EA, dans ces matériaux sous sollicitations. L'influence des différents mécanismes apparaissant au sein des matériaux, sur les paramètres des ondes US, a été montrée ce qui nous a permis de mieux aborder la possibilité de détection des signaux d'EA. Nous nous intéressons notamment à

l'initiation de l'activité acoustique associée aux prémices de la déformation plastique et de l'endommagement d'une part, et à la corrélation entre les signaux d'EA et les différents mécanismes d'autre part.

Ce manuscrit est composé de quatre chapitres.

Le premier chapitre sera consacré à une synthèse bibliographique permettant ainsi d'exposer d'une part les caractéristiques microstructurales et morphologiques des polymères semi-cristallins et d'autre part, d'identifier les différents micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissant en leur sein et conduisant à une transformation progressive de leur structure lors d'un essai de traction. Nous présenterons les techniques mises en œuvre pour répondre aux besoins de l'étude de l'initiation de la déformation plastique et de l'endommagement de ces matériaux. Par conséquent, nous décrirons brièvement les méthodes de contrôle non destructif (CND) mises en œuvre pour nos investigations. Des notions sur la propagation des ondes US dans les milieux élastiques seront également présentées. Enfin, nous ferons une synthèse bibliographique des travaux déjà effectués sur la caractérisation de la déformation plastique et de l'endommagement de polymères semi-cristallins par les techniques d'EA et de contrôle US.

Dans le second chapitre, nous présenterons les techniques employées lors de cette thèse. Une attention particulière sera portée sur les techniques CND utilisées. Nous détaillerons les principes des techniques d'EA et de contrôle US ainsi que le matériel employé pour la détection et l'enregistrement des signaux d'EA et US. Nous préciserons les méthodes utilisées pour le calcul de la vitesse et de l'atténuation des ondes. Enfin, nous exposerons les caractéristiques des trois matériaux étudiés ainsi que les traitements thermiques mis en œuvre afin de modifier leur microstructure.

Le troisième chapitre exposera les résultats obtenus à l'aide la technique de contrôle US. Ce chapitre s'articulera en deux grandes parties :

- La première partie portera sur l'étude de la propagation d'ondes US dans les polymères semi-cristallins choisis, à l'état non déformé. Nous montrerons l'influence sur la propagation des ondes guidées de nombreux facteurs tels que la distance de propagation, l'épaisseur des éprouvettes, la fréquence des ondes et le taux de cristallinité des matériaux. Nous comparerons le comportement des ondes de volume dans ces matériaux.
- Dans la seconde partie, nous étudierons la propagation des ondes US dans les matériaux étudiés au cours d'essais de traction, nous amenant à montrer l'effet des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement, ainsi que l'évolution de la géométrie des éprouvettes dû à la formation de la striction sur les paramètres des ondes.

Le quatrième et dernier chapitre portera sur l'étude de l'initiation de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins à l'aide de la technique d'EA. Dans un premier temps, nous chercherons à déterminer si les signaux détectés sont effectivement originaires des mécanismes de plasticité et d'endommagement ou s'ils proviennent d'artefacts de mesures tels que du bruit ou de divers glissements liés au montage expérimental. Nous définirons les conditions expérimentales les plus favorables à l'acquisition de signaux d'EA, nous amenant ainsi à expliquer le comportement de l'activité acoustique au cours des essais. L'initiation de l'activité acoustique en fonction du taux de cristallinité ainsi que la corrélation des signaux détectés aux mécanismes de plasticité et d'endommagement seront également analysées.

Enfin pour achever ce manuscrit, une partie exposera les conclusions et les perspectives à ce travail de thèse.

CHAPITRE I

ETAT DE L'ART : MICROSTRUCTURE ET MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT DES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS, ET METHODES D'EVALUATION NON-DESTRUCTIVES ULTRASONORES

1. SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LA MICROSTRUCTURE, LES PROPRIETES MECANQUES ET LES MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT DES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS.....	19
1.1. INTRODUCTION	19
1.2. MICROSTRUCTURE ET MORPHOLOGIE	20
1.2.1. <i>Chaine macromoléculaire</i>	20
1.2.2. <i>Maille cristalline</i>	21
1.2.3. <i>Structures lamellaires</i>	22
1.2.3.1. <i>Lamelles cristallines</i>	22
1.2.3.2. <i>Lamelles amorphes</i>	22
1.2.4. <i>Empilement lamellaire</i>	23
1.2.5. <i>Agrégats polycristallins</i>	23
1.3. CRISTALLISATION ET TRAITEMENTS THERMIQUES	24
1.3.1. <i>Cristallisation</i>	24
1.3.1.1. <i>Germination</i>	24
1.3.1.2. <i>Croissance</i>	25
1.3.2. <i>Traitements thermiques</i>	25
1.3.2.1. <i>Trempe</i>	25
1.3.2.2. <i>Traitement isotherme</i>	26
1.4. MÉCANISMES DE DÉFORMATION DES POLYMÈRES SEMI-CRISTALLINS EN TRACTION.....	26
1.4.1. <i>Comportement élastique et anélastique</i>	27
1.4.2. <i>Écoulement plastique</i>	28
1.4.2.1. <i>Cisaillement des cristallites</i>	28
1.4.2.2. <i>Cavitation</i>	29
1.4.2.3. <i>Transformation martensitique</i>	31
1.4.3. <i>Durcissement et rupture</i>	31
1.5. BESOINS POUR LA CARACTÉRISATION DE L'INITIATION DE LA DÉFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT	32
2. ÉVALUATION NON-DESTRUCTIVE DE LA DÉFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT DE MATÉRIAUX	32
2.1. INTRODUCTION	32
2.2. SUIVI DE LA DÉFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT PAR DES MÉTHODES ULTRASONORES	33
2.2.1. <i>Émission acoustique</i>	33

2.2.2. <i>Contrôle par ultrasons</i>	33
2.3. PROPAGATION DES ONDES ULTRASONORES DANS LES MILIEUX ELASTIQUES.....	34
2.3.1. <i>Ondes de volume</i>	34
2.3.2. <i>Ondes de surface</i>	35
2.3.3. <i>Ondes de plaque</i>	35
2.4. ATTÉNUATION.....	36
2.4.1. <i>Diffusion</i>	37
2.4.2. <i>Absorption</i>	38
3. APPLICATIONS AUX MATÉRIAUX POLYMÈRES SEMI-CRISTALLINS.....	39
3.1. ÉMISSION ACOUSTIQUE	39
3.1.1. <i>Cristallisation</i>	39
3.1.2. <i>Suivi de la déformation plastique et de l'endommagement</i>	40
3.2. CONTRÔLE PAR ULTRASONS	42
3.2.1. <i>Propagation et atténuation des ondes US</i>	42
3.2.2. <i>Suivi de la déformation plastique et de l'endommagement</i>	44
4. CONCLUSIONS ET OBJECTIFS DE LA THÈSE	46

Dans une première partie, nous présenterons un état de l'art sur la microstructure, la morphologie et les mécanismes de déformation plastique et d'endommagement des polymères semi-cristallins en traction uniaxiale. Nous montrerons l'intérêt d'utiliser des techniques d'analyses basées sur la détection et la propagation d'ondes ultrasonores (US) pour caractériser l'initiation de la plasticité et de l'endommagement des polymères semi-cristallins.

Les techniques d'émission acoustique (EA) et de contrôle par ondes US seront succinctement présentées dans une deuxième partie. La propagation des ondes US dans les milieux élastiques y sera également abordée.

Une synthèse bibliographique sera exposée dans la troisième partie, concernant l'utilisation des techniques d'EA et de contrôle par ondes US pour caractériser la déformation plastique et l'endommagement de polymères semi-cristallins.

Enfin, nous exposerons la démarche adoptée afin de répondre aux problématiques de cette thèse.

1. SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LA MICROSTRUCTURE, LES PROPRIETES MECANQUES ET LES MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT DES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS

1.1. INTRODUCTION

En 1922, le chimiste allemand Hermann Staudinger (prix Nobel de chimie en 1953) démontre l'existence des macromoléculaires et les identifient comme étant des polymères. Une macromolécule est une longue molécule contenant des atomes liés entre eux par des liaisons covalentes primaires. Elles sont obtenues par un procédé, nommé polymérisation, au cours duquel les molécules de monomères réagissent ensemble pour former des chaînes linéaires ou ramifiées constituant ainsi un réseau tridimensionnel.

Les polymères sont classés en trois catégories :

- les élastomères : polymères réticulés caoutchouteux qui peuvent subir des allongements très importants et récupèrent rapidement leurs dimensions après relâchement de la contrainte;
- les thermodurcissables : polymères rigides dont la polymérisation est irréversible;
- les thermoplastiques : polymères qui ramollissent à hautes températures et qui se figent à basses températures.

Les thermoplastiques sont utilisés dans de nombreux domaines d'applications industriels, généralement sous des sollicitations viscoélastiques. De nombreuses techniques de transformations permettent de mouler ces matériaux dans pratiquement toutes les formes possibles. Les thermoplastiques possèdent la particularité de pouvoir cristalliser au cours d'un refroidissement depuis l'état fondu. Par conséquent, leur microstructure se différencie des autres types de polymères par la coexistence de deux phases : amorphe et cristalline.

1.2. MICROSTRUCTURE ET MORPHOLOGIE

Les polymères semi-cristallins présentent une microstructure complexe causée par la coexistence des phases amorphe et cristalline. Dans cette partie, nous décrirons la microstructure, organisée en plusieurs échelles d'observation (Figure.I.1), ainsi que la morphologie de ces matériaux.

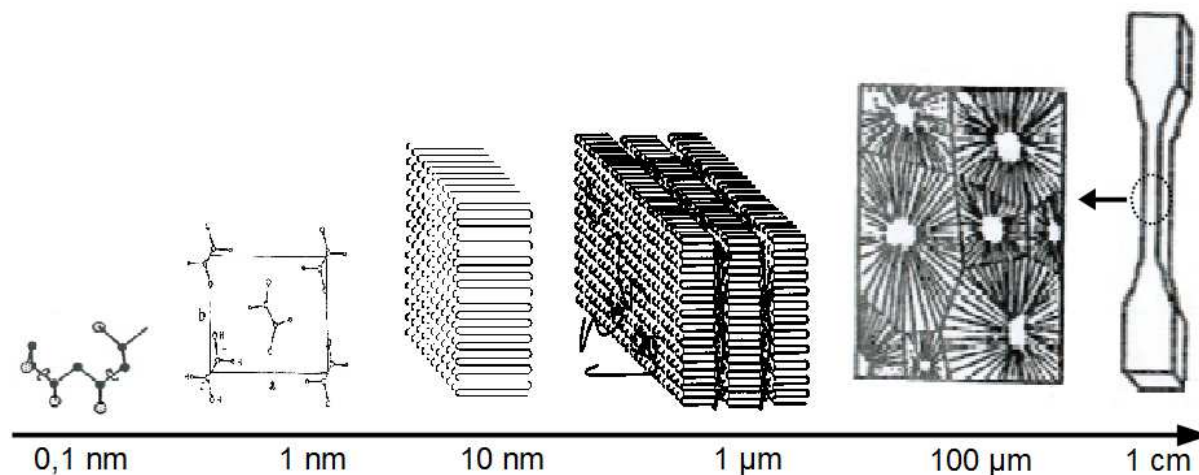


Figure.I.1. Schéma des différentes échelles d'observation d'un polymère semi-cristallin.

1.2.1. Chaîne macromoléculaire

La première échelle d'observation correspond à la structure macromoléculaire (ou squelette), dans laquelle les atomes sont assemblés entre eux par des liaisons covalentes. Le squelette est composé de la répétition de k motifs de monomères dont la masse molaire est notée M_k . k est aussi appelé degré de polymérisation et la masse macromoléculaire est obtenue simplement par la relation $M = k.M_k$. En pratique, la longueur des chaînes d'un matériau polymère n'est jamais identique car le degré de polymérisation varie pour toutes les macromolécules. Ainsi, il est plus approprié de définir une fonction de distribution des masses moléculaires $N_j = f(M_j)$, avec N_j le nombre de mole de chaînes à j motifs et de masse moléculaire M_j . Les masses moléculaires moyennes en nombre M_n et en poids M_w peuvent être calculées par les relations :

$$\bar{M}_n = \frac{\sum_i N_i M_i}{\sum_i N_i} \quad (\text{Eq.I. 1})$$

$$\bar{M}_w = \frac{\sum_i N_i M_i^2}{\sum_i N_i M_i} \quad (\text{Eq.I. 2})$$

À l'état fondu, les chaînes macromoléculaires sont orientées aléatoirement et sont liées avec d'autres chaînes via des enchevêtrements. L'arrangement local des macromolécules offre une conformation en pelote statistique des chaînes dont la taille caractéristique est donnée par le rayon de giration R_g . La taille de ce dernier dépend du nombre n de liaisons C-C, d'un facteur D

lié à la raideur de la molécule de longueur l . Ce rayon est aussi proportionnel à la racine carrée de la masse moléculaire des chaînes.

$$R_g^2 = \frac{1}{6} Dnl^2 \quad (Eq.I. 3)$$

Le mécanisme de reptation, proposé par De Gennes [DEG71], décrit le mouvement des chaînes, dans l'état fondu. Les macromolécules étant piégées par un grand nombre de défauts autour d'elles dans un réseau tridimensionnel, ne peuvent se mouvoir qu'à la manière d'un serpent. Ces mouvements des chaînes permettent la cristallisation du polymère en deux étapes, la germination et la croissance des chaînes macromoléculaires à partir de l'état fondu qui seront présentées dans la partie 1.3.

1.2.2. Maille cristalline

La seconde échelle d'observation correspond à la maille cristalline dont les dimensions peuvent être mesurées à l'aide de techniques de diffusion des rayons X. Contrairement à la phase amorphe désordonnée, la phase cristalline présente un arrangement régulier de segments de chaînes macromoléculaires liées entre-elles par des liaisons faibles de Van der Waals.

Au cours de ce travail, nous avons choisi d'étudier trois polymères semi-cristallins : le Polyéthylène (PE), le Polypropylène (PP) et le Polyfluorure de vinylidène (PVDF). Les propriétés et les caractéristiques des matériaux choisis seront présentées dans le chapitre suivant.

Le motif du monomère du PE est $\text{CH}_2\text{-CH}_2$ et sa masse molaire est de 28 g/mol [LI01]. La structure élémentaire cristalline la plus stable et la plus couramment rencontrée dans le PE correspond à une maille orthorhombique. Sa masse volumique est de 1 003 kg/m³ [CRI89]. Bunn a déterminé les paramètres de cette maille : $a = 7,42 \text{ \AA}$; $b = 4,95 \text{ \AA}$ et $c = 2,55 \text{ \AA}$, l'axe c est suivant l'orientation des chaînes macromoléculaires [BUN39] (Figure.I.2.a).

Le PE fond à 140°C environ, et sa température de transition vitreuse est de -120°C [RAU02].

Le monomère du PP est $\text{CH}_2\text{-C}_2\text{H}_4$, et sa masse molaire est de 42 g/mol [GAU81]. Il peut cristalliser dans quatre phases différentes [TOR01]. Dans les conditions classiques de cristallisation, la phase cristalline la plus stable possède une maille monoclinique, aussi appelée phase α , dont les paramètres sont : $a = 6,66 \text{ \AA}$; $b = 20,78 \text{ \AA}$ et $c = 6,495 \text{ \AA}$ [CHE95] (Figure.I.2.b). Sa masse volumique est plus faible que celle du PE et vaut 946 kg/m³. Tandis que la température de fusion de cette phase est de 170°C.

Cependant, lors d'un refroidissement rapide, il n'est pas rare qu'une autre phase cristallise. Cette maille hexagonale, aussi appelée phase β , est moins stable thermodynamiquement que la phase α [WON04]. La température de transition vitreuse du PP est de -20°C.

Le PVDF a pour motif $\text{CF}_2\text{-CH}_2$, de masse molaire 64 g/mol [MUR00]. Ce matériau présente un polymorphisme cristallin avec cinq structures connues [DAV88]. La phase la plus stable et la plus fréquemment rencontrée dans les conditions classiques de cristallisation est une maille monoclinique (phase α) qui cristallise à une température proche de 150°C, tandis que sa température de fusion est 170°C.

La température de transition vitreuse du PVDF est de -40°C [ELM01]. Les paramètres de maille de cette structure sont : $a = 4,96 \text{ \AA}$; $b = 9,64 \text{ \AA}$ et $c = 4,62 \text{ \AA}$ [HAS72] (Figure.I.2.c). Sa masse volumique, qui est plus grande que celles du PE et du PP, est égale à $1\,980 \text{ kg/m}^3$.

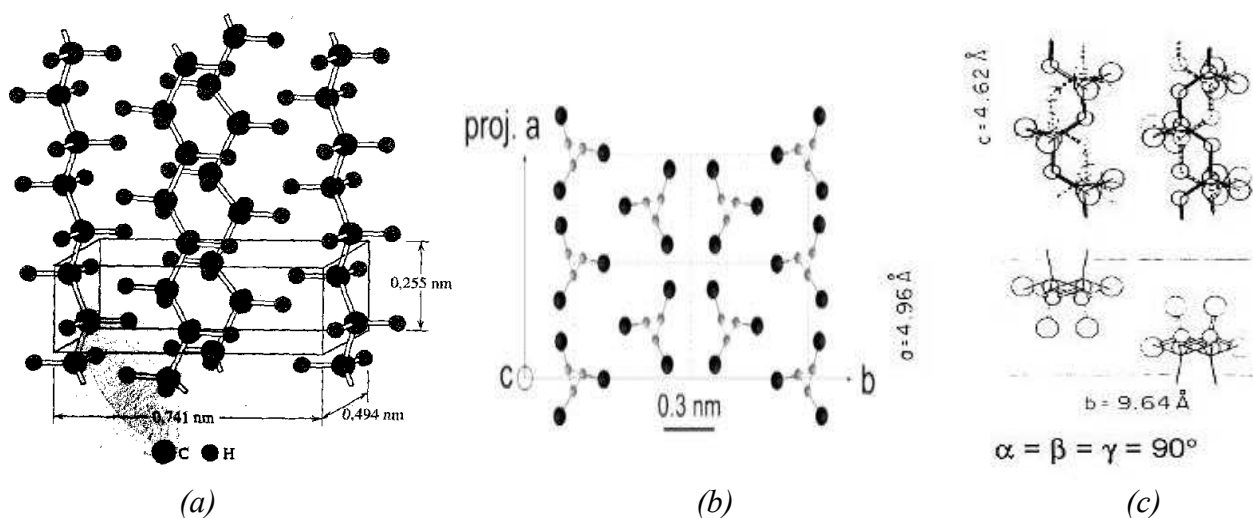


Figure.I.2. Mailles cristallines (a) du PE, (b) du PP et (c) du PVDF.

1.2.3. Structures lamellaires

À l'échelle nanométrique, la structure d'un polymère semi-cristallin est généralement composée d'un ensemble de lamelles cristallines séparées par de la phase amorphe.

1.2.3.1. Lamelles cristallines

Il est possible d'observer la cristallisation des chaînes macromoléculaires d'un polymère semi-cristallin lors de son refroidissement à partir de l'état fondu. Les chaînes s'arrangent régulièrement les unes par rapport aux autres. La cristallisation des chaînes est contrôlée par les cinétiques de germination et de croissance. De multiples repliements des macromolécules en petits segments se produisent donnant naissance à des lamelles cristallines dont l'épaisseur est typiquement de l'ordre d'une dizaine de nanomètres. La cohésion entre les segments est assurée par les forces de Van der Waals. L'anisotropie des lamelles cristallines induit des constantes d'élasticité différentes suivant les directions d'alignement des chaînes. En particulier, le module est plus élevé dans l'axe d'alignement des chaînes que dans les autres directions.

1.2.3.2. Lamelles amorphes

La phase amorphe se caractérise par l'absence d'ordre des chaînes moléculaires à grande distance. L'enchevêtrement des macromolécules offre une conformation en pelote statistique des chaînes de la phase amorphe présentant un arrangement désordonné similaire à celui observé dans l'état fondu. Le comportement viscoélastique du matériau se trouve essentiellement influencé par la configuration de la phase amorphe. En effet, lorsque la vitesse de déformation du matériau est lente devant la vitesse de réponse de celui-ci, représentée par le temps de relaxation, le comportement du polymère est élastique car les enchevêtrements des chaînes peuvent être vus comme les nœuds d'un réseau à trois dimensions. En revanche, lorsque la vitesse de déformation

est élevée, les enchevêtrements des chaînes peuvent se déplacer et le polymère peut présenter un comportement visqueux.

La phase amorphe est intercalée entre deux lamelles cristallines. À l'image de la phase cristalline, la phase amorphe présente l'aspect d'une lamelle. On parle alors de lamelle amorphe.

Lorsque le matériau est étudié au-dessus de sa température de transition vitreuse T_g , la phase amorphe est à l'état caoutchoutique.

1.2.4. Empilement lamellaire

Les propriétés mécaniques des polymères semi-cristallins dépendent fortement du couplage physique entre les lamelles cristallines et amorphes. En effet, des segments de chaînes macromoléculaires peuvent participer en même temps au cristal et à la phase amorphe (Figure.I.3). Par conséquent, la régularité des repliements des chaînes pour former les lamelles cristallines a une influence significative sur les propriétés mécaniques car ces segments de chaînes lient les deux phases. L'interface entre le cristal et la phase amorphe est constituée de segments de chaînes, de boucles pendantes et de comonomères. Cette interface, nommée interphase, est généralement considérée comme la troisième phase du matériau car elle n'est que partiellement désordonnée. Par conséquent, sa densité est plus grande que celle de la phase amorphe mais plus faible que celle du cristal. Son épaisseur diminue lorsque le repliement des chaînes, formant les lamelles cristallines, est régulier. À l'inverse, les repliements sont plus irréguliers lorsque le taux de comonomères et la masse moléculaire sont élevés. La liaison entre les deux phases est assurée par des boucles liantes et pendantes et par des molécules liens qui jouent le rôle de « transmetteurs de contraintes ». Ces éléments de liaison assurent ainsi le couplage mécanique et transmettent les contraintes entre les phases amorphe et cristalline.

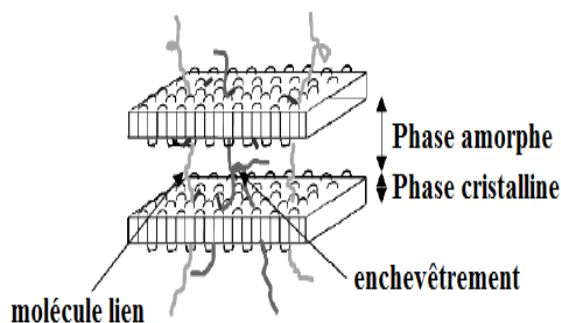


Figure.I.3. Schéma d'empilements lamellaires des phases amorphe et cristalline.

1.2.5. Agrégats polycristallins

À l'échelle mésoscopique, les lamelles cristallines et amorphes s'organisent en arrangements polycristallins. Selon les paramètres des chaînes macromoléculaires et des conditions de cristallisation, la géométrie des arrangements polycristallins peut varier. Cependant, les structures les plus couramment formées sont des structures radiales appelées sphérolites (Figure.I.4). Leur croissance, qui est issue d'un seul germe, démarre du centre avec une symétrie sphérique et leur taille augmente jusqu'à occuper l'ensemble de l'espace disponible. La taille caractéristique des sphérolites est de l'ordre d'une centaine de micromètres et peuvent

être observées par des techniques variées telles que les microscopies optique, électronique à balayage (MEB) et à force atomique (AFM).

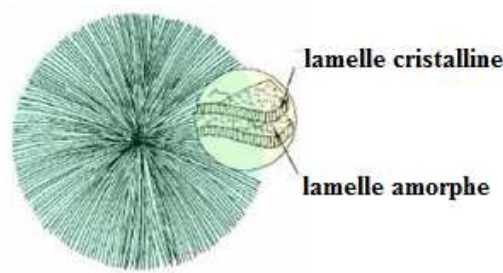


Figure.I.4. Schéma d'une sphérolite.

1.3. CRISTALLISATION ET TRAITEMENTS THERMIQUES

1.3.1. Cristallisation

Le processus de cristallisation des chaînes macromoléculaires s'effectue généralement à partir de l'état fondu et présente deux étapes distinctes : la germination (aussi appelée nucléation) et la croissance.

Pendant la germination, des cristaux (aussi appelés germes cristallins) se forment à partir de segments de chaînes. La stabilité thermodynamique d'un germe cristallin dépend de l'énergie libre surfacique des repliements σ_e , de la température T , de l'enthalpie de fusion par unité de volume ΔH et de la température de fusion d'une lamelle cristalline de taille infinie T_f^0 . L'épaisseur minimale l_{min} d'un germe peut donc être calculée de la manière suivante :

$$l_{min} = \frac{2\sigma_e T_f^0}{\Delta H (T_f^0 - T)} \quad (Eq.I. 4)$$

Seuls, les cristaux dont la taille est supérieure à l_{min} peuvent grossir durant l'étape de croissance.

1.3.1.1. Germination

La germination est homogène lorsqu'un germe n'est formé à partir des chaînes du polymère fondu, on parle alors de germe primaire. Elle est hétérogène lorsque le germe se forme au contact d'une hétérogénéité ou d'un autre cristal du polymère. Dans ce cas, la germination est dite secondaire lorsque le germe est déposé à la surface d'une impureté ou d'une structure cristalline. Et la germination est dite tertiaire lorsque le germe est déposé dans un coin d'une structure cristalline. Dans la pratique, la germination hétérogène est essentiellement rencontrée. Par conséquent, le nombre de germes dépend du nombre d'impuretés présents dans le matériau. Cette étape étant liée au mouvement des chaînes dans le fondu, la vitesse de refroidissement du matériau a donc aussi une forte influence sur la structure cristalline.

1.3.1.2. Croissance

Après la formation d'un germe cristallin, la croissance s'effectue par le dépôt successif de segments de chaînes sur les surfaces latérales du germe primaire, qui peut être schématisé sous la forme d'un parallélépipède. Ce phénomène est décrit par la théorie de Lauritzen-Hoffman [HOF97]. Les surfaces latérales du germe étant les surfaces de croissance du cristal, il en découle que son épaisseur initiale évolue peu au cours de la croissance.

Selon la température, trois régimes de croissance (Figure.I.5) sont définis :

- Régime I : pour des températures élevées, l'agitation moléculaire rend difficile la formation de germes cristallins et le remplissage de couches existantes est plus rapide. Dans ce régime, la croissance dépend donc de la vitesse de dépôt des germes secondaires;
- Régime II : pour des températures intermédiaires, le remplissage des couches se fait à la même vitesse que la formation des nouvelles;
- Régime III : pour des températures plus faibles, la vitesse de remplissage est lente devant celle de dépôt des germes secondaires. Par conséquent, la vitesse de croissance est de nouveau essentiellement pilotée par la vitesse de dépôt des germes secondaires.



Figure.I.5. Les trois régimes de croissance des lamelles cristallines [AMA06].

1.3.2. Traitements thermiques

La microstructure des matériaux peut être modifiée en effectuant différents traitements thermiques. Les deux traitements thermiques utilisés au cours de cette thèse sont la trempe et le traitement isotherme. Ils nous permettront d'obtenir des matériaux avec des microstructures variées.

1.3.2.1. Trempe

Lors d'une trempe, le polymère fondu est refroidi plus ou moins rapidement, dans l'eau ou à l'air, afin de ramener sa température à l'ambiante. Au cours de son refroidissement, le matériau va cristalliser autour de sa température de cristallisation T_c . La cristallisation va s'effectuer suivant le régime II. Ce type de traitement thermique favorise la formation de germes de petites tailles, donnant ainsi des lamelles cristallines de faible épaisseur. De plus, le refroidissement rapide du matériau limite les possibilités de réarrangement des chaînes. Par conséquent, le taux de cristallinité obtenu est faible en général.

1.3.2.2. Traitement isotherme

Lors d'un traitement isotherme, le polymère fondu est refroidit jusqu'à atteindre une température légèrement supérieure à T_c et est alors maintenu à cette température élevée pendant un certain temps, au cours duquel le matériau cristallise. Dans ce cas, la cristallisation suit le régime I. En effet, ce traitement thermique favorise la formation de germes cristallins de grandes tailles et le taux de cristallinité obtenu est élevé.

1.4. MECANISMES DE DEFORMATION DES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS EN TRACTION

À l'état non déformé, les polymères semi-cristallins possèdent des propriétés élastiques isotropes. Le comportement macroscopique en traction uniaxiale de plusieurs polymères semi-cristallins est présenté sur la Figure.I.6. La courbe mécanique contrainte-déformation présente trois domaines de déformation avant la rupture du matériau :

- domaine élastique et anélastique : phase initiale de déformation homogène qui s'étend jusqu'au seuil de plasticité;
- plateau d'écoulement plastique : phase apparaissant après le seuil de plasticité, au cours de laquelle la déformation est hétérogène. Une striction peut apparaître et se propager le long de l'éprouvette lors de cette phase de déformation;
- durcissement : phase dont la déformation est de nouveau homogène, débutant après que la striction se soit propagée sur l'ensemble de la zone utile de l'éprouvette. Cette phase précède souvent la rupture correspondant à la ruine du matériau.

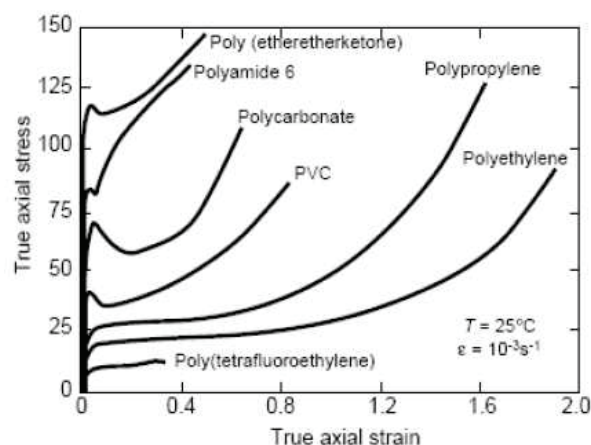


Figure.I.6. Comportement macroscopique de plusieurs polymères semi-cristallins en traction uniaxiale [GES92].

1.4.1. Comportement élastique et anélastique

Au cours du stade de déformation élastique, la courbe mécanique présente un comportement linéaire ainsi la contrainte σ et la déformation ε sont reliées par le module d'Young (ou d'élasticité), noté E , du matériau conformément à la loi de Hooke :

$$\sigma = E\varepsilon \quad (Eq.I. 5)$$

Au-dessus de la température de transition vitreuse, la phase amorphe présente un comportement caoutchoutique et possède un module de Young très faible par rapport à celui de la phase cristalline.

Par conséquent, lorsqu'un faible taux de déformation est imposé au matériau, la phase amorphe est la première à se mouvoir et participe essentiellement à la déformation élastique.

Deux modes de déformation de la phase amorphe peuvent être cités : la séparation et le glissement interlamellaire [BOW74, GSE94, PET78].

- le glissement interlamellaire résulte du cisaillement des lamelles cristallines, parallèles entre-elles, sous l'effet d'une contrainte de cisaillement, comme le montre la Figure.I.7.b. Ce mode de déformation concerne principalement les lamelles orientées obliquement par rapport à l'axe de traction;
- la séparation interlamellaire entraîne une augmentation de la distance entre les lamelles cristallines dont la normale est orientée dans la direction de traction. Ce mode de déformation intervient uniquement pour les lamelles cristallines dont la normale est parallèle à l'axe de sollicitation (Figure.I.7.c).

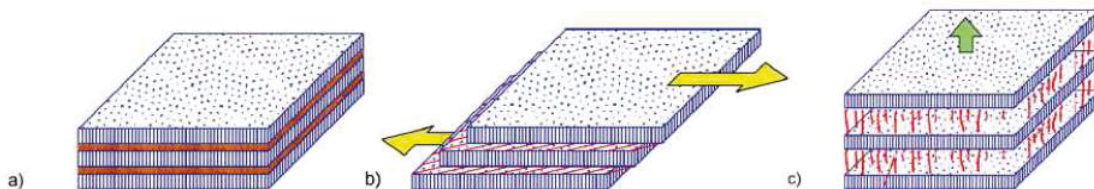


Figure.I.7. Déformation des empilements lamellaires (a) état non déformé, (b) glissement interlamellaire, (c) séparation interlamellaire [HAU95].

Au-delà d'une certaine contrainte appliquée au matériau, la dépendance contrainte-déformation devient non-linéaire, ce qui indique l'apparition d'une déformation anélastique [PET75]. Il est communément entendu que la déformation plastique des lamelles cristallines s'initie au seuil de plasticité. Cependant, des auteurs rendent état de l'apparition de micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement avant le seuil [HUM10, XIO13].

1.4.2. Écoulement plastique

Au cours de l'écoulement plastique, de nombreux mécanismes de déformation apparaissent. En effet, la microstructure du matériau se trouve fortement modifiée et la structure sphérolitique initiale se transforme progressivement en une structure fibrillaire. Les lamelles se fragmentent en blocs cristallins liés entre eux par des chaînes amorphes dépliées et orientées dans le sens de traction.

Les propriétés élastiques et mécaniques du matériau se trouvent ainsi fortement altérées. Au cours de ce stade de déformation, les différents mécanismes de plasticité et d'endommagement (cisaillement des cristallites, cavitation, transformation martensitique, ...) peuvent apparaître simultanément. La Figure.I.8 montre un schéma du passage d'une structure sphérolitique (lamellaire) à une structure fibrillaire avec formation de cavitation lors d'un essai de traction.

Il est classiquement considéré que le cisaillement des lamelles cristallines apparaît au seuil de plasticité. Dans les polymères semi-cristallins, la déformation plastique du cristal s'effectue par des glissements cristallographiques qui entraînent la fragmentation des lamelles cristallines et la formation d'une nouvelle structure sans lien avec la structure initiale.

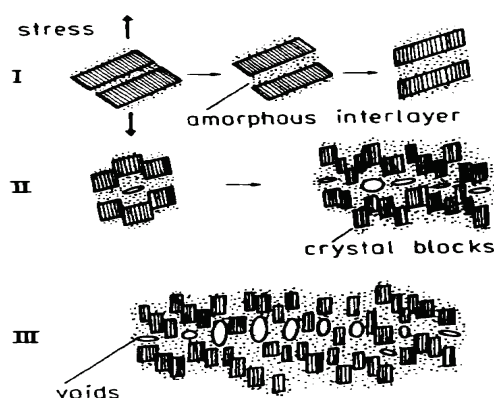


Figure.I.8. Passage d'une structure lamellaire à une structure fibrillaire avec fragmentation des lamelles cristallines et avec cavitation [FRI83].

Ces glissements de plans cristallographiques, ou mouvements de dislocations, sont responsables de la déformation des lamelles cristallines [GAL03]. Deux types de mécanismes de cisaillements ont été identifiés : glissement homogène et glissement hétérogène [PAW14].

Le glissement homogène des plans cristallins entraîne une rotation des lamelles cristallines dans la direction des chaînes macromoléculaires. Dans le cas du glissement hétérogène, les lamelles cristallines ne subissent pas de réorientations, ce qui engendre la fragmentation des lamelles en petits blocs cristallins.

Les sphérolites subissent une déformation hétérogène selon les différentes régions les caractérisant. Trois types de régions peuvent être distingués selon leur orientation par rapport à la direction de traction [HAU95] :

- Régions équatoriales : la normale des lamelles est perpendiculaire à l'axe de traction et le mécanisme de séparation interlamellaire est donc prédominant (Figure.I.9.c);

- Régions diagonales : les lamelles sont orientées obliquement par rapport à la direction de traction. Les lamelles subissent à la fois du glissement et de la séparation interlamellaire, et tendent à s'orienter dans l'axe de traction (Figure.I.9.b et d);
- Régions polaires : la normale des lamelles est parallèle à l'axe de traction. Le mécanisme de glissement interlamellaire est donc prédominant et les chaînes vont s'orienter dans l'axe de traction (Figure.I.9.a).

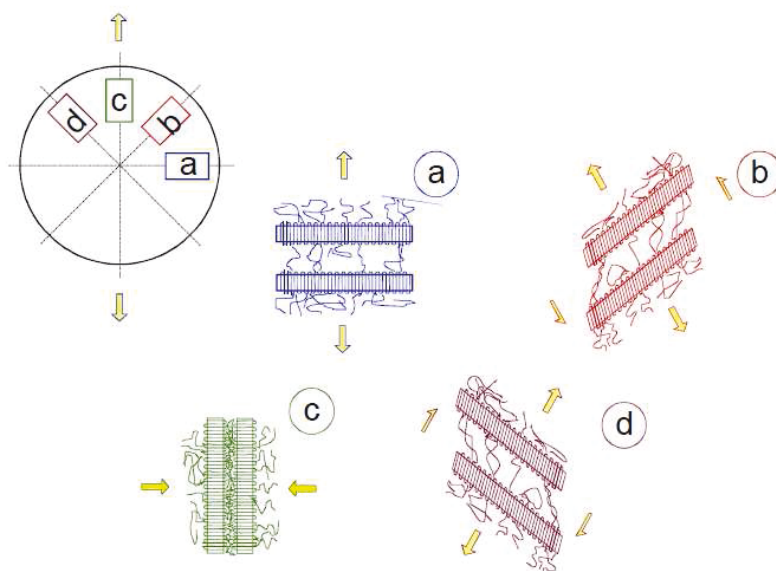


Figure.I.9. Schéma de déformation dans une sphérolite des lamelles amorphes et cristallines orientées (a) perpendiculairement, (b) et (d) obliquement, et (c) parallèlement à l'axe de traction [HAU95].

La déformation des sphérolites entraîne une évolution de leur forme initiale quasi-sphérique vers une forme ellipsoïdale qui se trouve entièrement détruite lors de la formation de la structure fibrillaire. En plus de la déformation des sphérolites, Flory *et al.* [FLO78] ont suggéré qu'un processus de fusion/recristallisation accompagne la transformation fibrillaire.

1.4.2.2. Cavitation

La formation de cavités (trous) au cours de la déformation plastique de polymères semi-cristallins est appelée « cavitation ». Ce mécanisme est couramment observé aux basses températures et est lié à l'endommagement du matériau. Lors de leur formation, ces cavités ont une taille de l'ordre du nanomètre et peuvent atteindre plusieurs dizaines de micromètres au cours de leur étirement dans l'axe de traction. La cavitation apparaît uniquement sous des sollicitations en traction, jamais en compression ou en cisaillement [GAL03]. Très souvent, la détection des cavités est réalisée par des techniques de microscopies (MEB, TEM ou AFM) ou de diffusion des rayons X (SAXS) [ADD06, BUT98, SCH06]. Des mesures de densité permettent aussi de les détecter, car celles-ci diminuent la densité moyenne du matériau. Il est également possible d'observer leur formation à l'œil nu via le blanchissement du matériau, qui se produit généralement autour du seuil de plasticité [BUT97, CAS00].

L'apparition de la cavitation dépend de nombreux facteurs tels que la masse moléculaire, l'orientation des lamelles, la température ou encore la vitesse de déformation.

La formation des premières cavités s'effectue dans les régions équatoriales des sphérolites. En effet, dans ces régions, le mécanisme de déformation prépondérant est la séparation interlamellaire qui est connu pour favoriser l'apparition de micro-cavités [CAS00]. Aux grandes déformations, elles peuvent se former dans les régions polaires des sphérolites. Les cavités se forment à l'interface entre la phase amorphe et les lamelles cristallines, par conséquent les propriétés de l'interphase influencent le phénomène de cavitation. Cependant, il n'est pas clairement établi si les micro-cavités se forment avant ou après le seuil de plasticité.

Des études menées sur des PE par Butler *et al.* [BUT97] suggèrent que les micro-cavités se forment consécutivement au cisaillement de la phase cristalline qui apparaît au niveau du seuil de plasticité au cours d'un essai de traction. En revanche, pour Pawlak *et al.* [PAW05, PAW07], la cavitation peut apparaître avant le seuil de plasticité. En effet, en comparant la valeur de la contrainte d'écoulement entre un essai de traction et un essai de compression, les auteurs montrent que celle-ci est plus élevée lors des essais de compression au cours desquels le phénomène de cavitation est impossible. Ainsi au cours d'un essai de traction, les cavités apparaîtraient avant le seuil de plasticité et l'initiation de la déformation plastique du cristal s'effectue à plus faible contrainte.

Pawlak et Galeski ont suggéré qu'il existe une compétition entre la déformation plastique du cristal et la formation de micro-cavités dans la phase amorphe [PAW05, PAW07]. Des travaux récents de Humbert *et al.* [HUM10] puis de Xiong *et al.* [XIO13] ont permis de mettre en évidence cette compétition en étudiant l'influence des paramètres microstructuraux et moléculaires sur la cavitation de plusieurs PE. A partir de mesures de SAXS *in situ* pendant des essais de traction, ces auteurs ont montré que les PE étudiés présentent trois mécanismes de formation de micro-cavités différents. Certains PE présentent une cavitation, dite homogène, apparaissant avant le seuil de plasticité et qui consiste en la formation des micro-cavités tout le long de la zone utile de l'éprouvette. D'autres PE présentent une cavitation, dite hétérogène, dont la formation des micro-cavités est localisée dans la zone de la striction. Enfin, d'autres PE se déforment sans formation de micro-cavités. Ces mécanismes de formation dépendent à la fois de l'épaisseur des cristallites, qui gouverne la contrainte locale notée σ_{th} nécessaire pour cisailier une cristallite, et de la densité des transmetteurs de contraintes qui gouverne la contrainte locale notée σ_{cav} nécessaire à la formation d'une cavité. Ces auteurs montrent que lorsque l'épaisseur des lamelles cristallines est au-dessus d'une épaisseur critique, σ_{sh} est inférieure à σ_{cav} , ce qui implique que la formation de micro-cavités apparaît avant le cisaillement des cristallites. En revanche, lorsque l'épaisseur des lamelles cristallines est en dessous d'une épaisseur critique, σ_{sh} est supérieure à σ_{cav} , la formation de micro-cavités s'initie après le cisaillement des cristallites si la contrainte locale est suffisante. Dans le cas où la contrainte locale reste inférieure à σ_{cav} , l'apparition de la cavitation n'est pas possible.

Il apparaît donc que le mécanisme de formation de la cavitation dépend des paramètres microstructuraux du matériau.

Aux grandes déformations, les cavités se développent de manière anisotrope en s'allongeant dans l'axe de traction [PAW14].

1.4.2.3. Transformation martensitique

La transformation martensitique correspond à une transformation de la maille cristalline initiale en une autre maille sous l'effet de la contrainte. Ce mécanisme est réversible et la maille cristalline initiale réapparaît après le relâchement de la force. La technique de diffusion des rayons X (WAXS) permet d'observer aisément l'apparition de la nouvelle maille grâce à la formation de nouveaux pics dans le spectre de diffraction.

Dans le cas du PE, la maille orthorhombique initiale se transforme sous contrainte en une maille monoclinique. Cette maille monoclinique ne peut être obtenue que sous contrainte et disparaît après relâchement de la contrainte [LIN94].

Humbert [HUM09] a étudié cette transformation de phase pour des PE possédant des paramètres microstructuraux et moléculaires différents. Cette auteure a montré que la transformation martensitique s'initie de plus en plus tôt avant le seuil de plasticité lorsque le taux de cristallinité des PE augmente (Figure.I.10.a), cependant celle-ci s'effectue à des contraintes macroscopiques différentes (Figure.I.10.b).

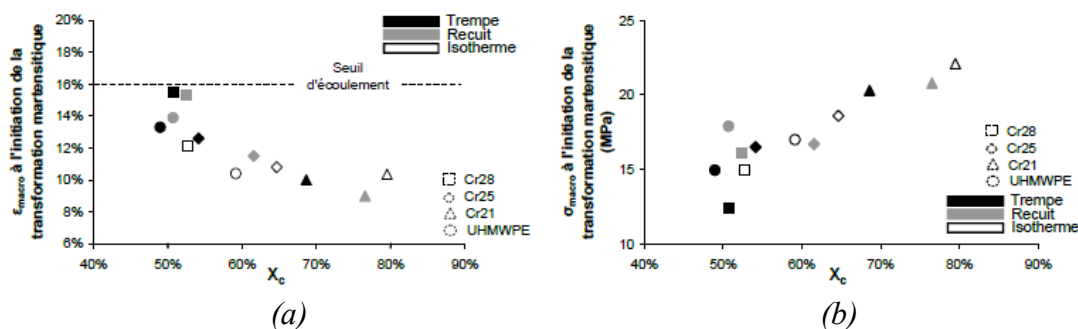


Figure.I.10. (a) Déformation et (b) contrainte macroscopique de l'initiation de la transformation martensitique de plusieurs PE [HUM09].

Dans le cas du PP, la maille hexagonale (phase cristalline β) peut se transformer en maille monoclinique (phase cristalline α) sous contrainte lors d'un essai de traction [LI98].

Dans le cas du PVDF, une maille orthorhombique se forme sous contrainte [HSU89]. Cette transformation de phase est optimale à 80°C [SAJ99]. Cette phase possède la particularité d'avoir un moment dipolaire qui lui confère des propriétés diélectriques et piézoélectriques importantes [GRE99].

Par conséquent, cette phase est très utilisée d'un point de vue technologique, notamment pour la fabrication de capteurs piézoélectriques [DEM10, OR00, PAR05].

1.4.3. Durcissement et rupture

Aux grandes déformations, la striction se propage sur l'ensemble de la zone utile de l'éprouvette, montrant que toute la structure sphérolitique initiale du matériau s'est transformée en structure fibrillaire, cette phase est appelée durcissement. Cette structure fibrillaire est donc composée par des petits blocs cristallins liés entre-eux par des chaînes amorphes fortement orientées dans l'axe de traction. Ces fibrilles ont une dizaine de nanomètres de diamètre et

quelques centaines de nanomètres de longueur [BLA10]. Les fibrilles continuent à s'orienter dans l'axe de traction jusqu'à la rupture du matériau qui fait intervenir des mécanismes de formation et de croissance de fractures, de cavitation et de cisaillement.

Les modes de rupture des polymères semi-cristallins sont de plusieurs natures : ductile, fragile ou une combinaison des deux. Le type de rupture est influencé par de nombreux paramètres comme par exemple la masse moléculaire des chaînes, le taux d'imperfections, l'histoire thermique du matériau, la vitesse de sollicitation ou encore la température.

1.5. BESOINS POUR LA CARACTERISATION DE L'INITIATION DE LA DEFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT

Comme nous l'avons montré précédemment, les micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement des polymères semi-cristallins apparaissant à l'échelle locale sont parfaitement identifiés. Des méthodes d'analyses telles que les techniques de diffusion des rayons X (SAXS et WAXS) associées entre autres à l'observation par microscopie électronique à balayage (MEB) ou par tomographie permettent de définir la chronologie d'apparition de ces mécanismes et leur impact sur les propriétés mécaniques. Cependant, l'amorçage de ces mécanismes est difficile à observer avec ces techniques d'analyses conventionnelles. En effet, outre des temps d'acquisition parfois long de ces techniques, l'apparition de ces micro-mécanismes modifie fortement les propriétés physiques des matériaux à l'échelle locale, ce qui limite leur détection et leur observation directe. Par conséquent, des techniques d'analyses non-destructives fondées sur la détection et la propagation d'ondes ultrasonores s'avèrent être des méthodes efficaces pour détecter et suivre la plasticité et l'endommagement des matériaux. Peu coûteuses, facile à mettre en œuvre et ne nécessitant pas de préparation particulière des matériaux à étudier, ces méthodes sont une excellente alternative aux techniques d'analyses classiques.

2. ÉVALUATION NON-DESTRUCTIVE DE LA DEFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT DE MATERIAUX

2.1. INTRODUCTION

De nombreuses méthodes d'évaluation non-destructives permettent l'inspection, la caractérisation et l'analyse de la déformation plastique et de l'endommagement d'une structure. Parmi ces techniques, peuvent être cités : les inspections visuelles (œil nu, microscopie optique), magnétiques (magnétoscopie), électriques (courants de Foucault) ou encore ultrasonores. Les techniques fondées sur la propagation d'ondes ultrasonores présentent de nombreux avantages comme par exemple leur facilité de mise en œuvre, leur qualité d'inspection, la capacité des ondes à traverser de grandes épaisseurs de matière (fonction de la fréquence), la relative facilité d'utilisation des équipements légers et mobiles et sans danger pour l'utilisateur. Parmi ces méthodes ultrasonores, la technique d'émission acoustique est la seule permettant la localisation et l'identification des mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissant dans le matériau. La singularité de cette technique est qu'elle repose sur l'acquisition d'ondes élastiques résultant de la libération d'énergie mécanique par le matériau lui-même lors de son endommagement. Ainsi, ces ondes contiennent les informations liées aux mécanismes de plasticité et d'endommagement. Cependant, les caractéristiques des ondes se trouvent modifiées

par leur propagation dans la structure. L'évaluation des effets associés à la propagation des ondes dans la structure, à la géométrie de la pièce et à l'endommagement structural du matériau au cours de sa déformation peut être effectuée à l'aide des techniques dites de contrôle par ultrasons, où l'on fait se propager des ondes ultrasonores issues d'une source contrôlée. Ces méthodes permettent de suivre la déformation d'un matériau en analysant les caractéristiques de la signature acoustique de la structure.

2.2. SUIVI DE LA DEFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT PAR DES METHODES ULTRASONORES

2.2.1. Émission acoustique

Le phénomène d'émission acoustique (EA) désigne toute manifestation d'onde acoustique dont la source se trouve au sein d'un matériau subissant une modification structurale. Ainsi chaque fois qu'il se produit une libération irréversible d'énergie élastique dans le matériau, une partie de cette énergie, est convertie sous la forme d'une onde de contrainte ou de déplacement. Ces ondes se propagent au sein du matériau jusqu'à finalement atteindre la surface où un capteur piézoélectrique traduit les vibrations ultrasonores en un signal électrique. Le capteur est mis en contact avec le matériau par l'intermédiaire d'un couplant fluide [SCR85].

Cette technique de mesure est classée parmi les méthodes de contrôle non destructif (CND) car la mesure des ondes en surface est en elle-même non destructive. Un des avantages de cette technique est que des défauts évolutifs dans une structure peuvent être détectés en temps réel. Cependant, elle ne permet pas d'obtenir d'informations ni de cartographies sur des défauts passifs présents dans cette structure.

2.2.2. Contrôle par ultrasons

La technique de contrôle par ultrasons repose sur la propagation d'ondes ultrasonores (US) afin de détecter, quantifier et caractériser des défauts et des hétérogénéités présents dans une structure. Cette technique permet aussi de suivre l'évolution microstructurale d'un matériau et de déterminer ses propriétés élastiques. Les signaux US sont générés par des sources entièrement contrôlées et aussi reproductibles que possible. Pour cela, nous pouvons utiliser des transducteurs US ou diverses sources impulsionnelles, comme les impacts laser.

Il existe trois catégories principales de méthodes de contrôle par ondes US :

- les mesures au contact : les capteurs sont en contact direct avec la structure à étudier via un couplant;
- les mesures sans contact : aucun intermédiaire spécifique n'est nécessaire entre les capteurs et la pièce à inspecter;
- les mesures en immersion : les capteurs sont plongés dans un milieu fluide permettant d'obtenir un couplage parfaitement reproductible.

Le suivi de l'état de la microstructure des matériaux peut être réalisé à l'aide de mesures soit *in situ* c'est-à-dire au cours de la déformation lors d'un essai de traction soit *ex situ* c'est-à-dire

après déformation. Cette méthode peut donc être utilisée en complément de la technique d'EA afin d'obtenir des informations sur l'évolution de la propagation des ondes US dans un matériau sous sollicitations.

2.3. PROPAGATION DES ONDES ULTRASONORES DANS LES MILIEUX ELASTIQUES

2.3.1. Ondes de volume

Une onde élastique est une onde associée au déplacement infinitésimal de la matière et qui se propage dans un matériau. Dans les milieux solides infinis, deux types d'ondes (aussi appelées ondes de volume) se propagent à des vitesses différentes :

- les ondes longitudinales (ou ondes de compression) : le déplacement de la matière est parallèle à la direction de propagation des ondes (Figure.I.11.a);
- les ondes transversales (ou ondes de cisaillement) : le déplacement des particules s'effectue perpendiculairement à la direction de propagation des ondes (Figure.I.11.b).

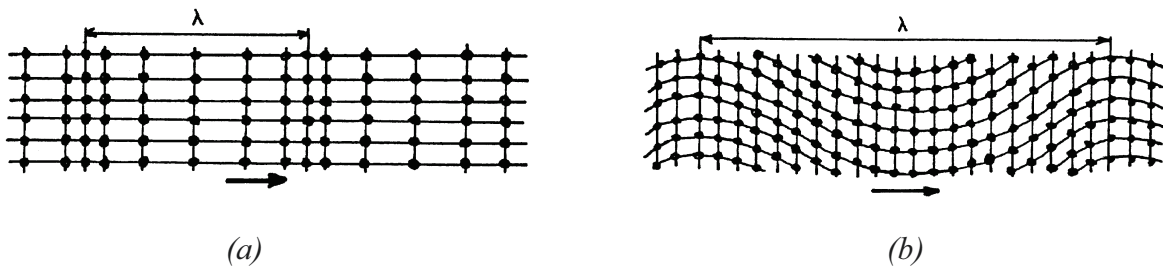


Figure.I.11. Représentations des ondes de volume (a) longitudinales et (b) transversales.

L'expression des vitesses longitudinales V_L et transversales V_T dépend du module d'Young E , de la masse volumique ρ du milieu et du coefficient de Poisson ν :

$$V_L = \sqrt{\frac{E(1-\nu)}{\rho(1+\nu)(1-2\nu)}} = \sqrt{\frac{M}{\rho}} \quad (\text{Eq.I. 6})$$

$$V_T = \sqrt{\frac{E}{2\rho(1+\nu)}} = \sqrt{\frac{G}{\rho}} \quad (\text{Eq.I. 7})$$

Avec M le module longitudinal et G le module de cisaillement.

Des exemples de vitesses longitudinales et transversales pour plusieurs matériaux sont présentés dans le Tableau.I.1.

Matériaux	Densité (g/cm ³)	Vitesse des ondes longitudinales V_L (m/s)	Vitesse des ondes transversales V_T (m/s)
Cuivre	8,9	4 700	2 260
Zinc	7,1	4 170	2 410
Aluminium	2,7	6 320	3 130
Verre de Quartz (silice)	2,6	5 570	3 520
Polytétrafluoroéthylène	2,2	1 350	550
Polystyrène	1,1	2 350	1 150

Tableau.I.1. Exemples de vitesses longitudinales et transversales pour différents matériaux.

2.3.2. Ondes de surface

Dans le cas d'un milieu limité, un autre type d'ondes peut se propager à la surface du matériau. Ces ondes de surface, appelées ondes de Rayleigh, impliquent un déplacement de la matière elliptique, de polarisation longitudinale perpendiculairement à la surface, comme le montre la Figure.I.12.

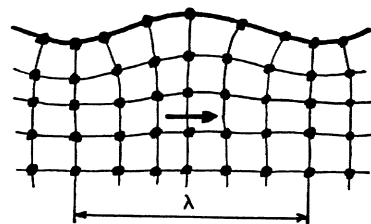


Figure.I.12. Représentation d'une onde de surface.

L'amortissement de l'amplitude des ondes de surface est plus faible que dans le cas des ondes de volume, car l'énergie de ces ondes reste confinée près de la surface du milieu. La vitesse de propagation des ondes de Rayleigh V_R est liée à celle des ondes transversales V_T par la relation (Eq.I. 8) :

$$V_R \approx 0,9 V_T \quad (\text{Eq.I. 8})$$

2.3.3. Ondes de plaque

Ces ondes, appelées ondes de Lamb, se propagent dans des structures dont la forme est une plaque d'épaisseur de l'ordre de la longueur d'onde du signal US. La vitesse de propagation de ces ondes dépend du produit de la fréquence et de l'épaisseur de la plaque : elles sont dispersives. Le déplacement des particules de la matière de la structure montre un profil symétrique ou anti-symétrique par rapport au plan médian, comme le montre la Figure.I.13 représentant les modes fondamentaux notés A_0 et S_0 . Lorsque le produit fréquence-épaisseur augmente, la vitesse de phase de ces modes fondamentaux tend vers une valeur unique qui est celle des ondes de Rayleigh. La vitesse de tous les autres modes convergent vers la même vitesse limite, qui est celle des ondes transversales.

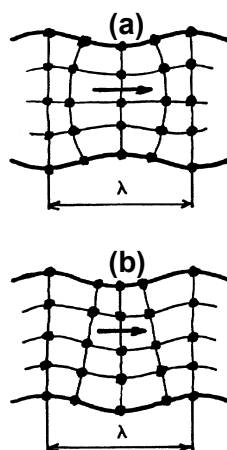


Figure.I.13. Représentations d'ondes de plaque (a) symétrique et (b) anti-symétrique.

2.4. ATTENUATION

L'atténuation des ondes US dans un milieu est un des principaux problèmes expérimentaux de cette méthode d'analyse des matériaux. En effet, en régime d'onde plane, l'amplitude et l'énergie d'une onde US diminuent lors de sa propagation dans un milieu et peuvent être décrites par une décroissance exponentielle $\exp(-\alpha x)$, où α (m^{-1}) est le coefficient d'atténuation du milieu et x (m) la distance parcourue. Sur la Figure.I.14, nous pouvons clairement voir la décroissance exponentielle de l'amplitude d'une onde longitudinale lors de sa propagation suivant l'épaisseur d'un PE. L'amplitude des réflexions successives (allers-retours) des ondes dans matériau est affectée par la distance de propagation ainsi que par la perte d'une partie de son amplitude lors de sa réflexion sur l'autre face du matériau.

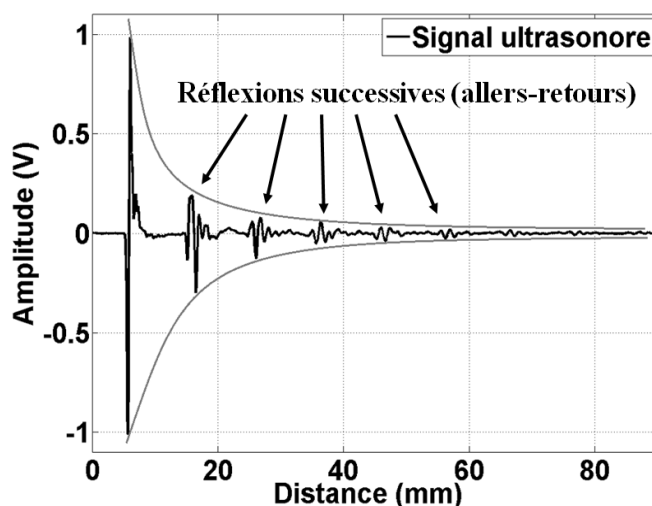


Figure.I.14. Atténuation exponentielle de l'amplitude d'une onde longitudinale en fonction de sa distance parcourue dans un PE.

L'atténuation globale d'une onde, c'est-à-dire la diminution de l'amplitude observée, peut résulter de plusieurs phénomènes distincts :

- L'atténuation intrinsèque du matériau;
- La forme et les dimensions de la structure (phénomènes de réflexions, réfractions, conversions de modes);
- L'instrumentation ou la procédure de mesure.

L'atténuation intrinsèque est la perte d'énergie de l'onde lors de son interaction avec la microstructure du matériau. Elle est indépendante de la géométrie de la structure, de la méthode de mesure et de l'instrumentation.

Cette atténuation est causée par deux types de phénomènes : l'absorption et la diffusion des ondes par le milieu. Ainsi le coefficient d'atténuation α est un paramètre composé du coefficient de diffusion α_d et du coefficient d'absorption α_a :

$$\alpha = \alpha_d + \alpha_a \quad (Eq.I. 9)$$

2.4.1. Diffusion

La diffusion est observée lorsqu'une partie de l'onde incidente est réfléchiée ou déviée à l'interface entre deux milieux d'impédances acoustiques différentes comme par exemple des inclusions, des défauts ou des porosités.

Dans un milieu isotrope, le phénomène de diffusion est indépendant de la direction de propagation de l'onde US. En revanche, dans un milieu anisotrope, l'atténuation dépend fortement de la direction de propagation de l'onde par rapport à l'orientation cristallographique des grains ou des hétérogénéités. La diffusion dépend aussi de la taille et de la forme des obstacles. Par conséquent, le phénomène de diffusion dépend du rapport λ/d (d est le diamètre moyen du grain ou de l'obstacle et λ la longueur d'onde) et trois domaines peuvent être définis [BOD11] (Figure.I.15) :

- **Domaine de Rayleigh** : dans ce domaine, l'obstacle est caractérisé par un diamètre moyen d inférieur à un tiers de la longueur d'onde ($d < \lambda/3$) et peut être considéré comme une particule dispersant l'onde. Lorsque l'onde rencontre l'obstacle une partie de son énergie est convertie et des ondes réfléchies sont créées. Le coefficient de diffusion s'écrit :

$$\alpha_d = C_l F_a d^3 f^4 \quad (Eq.I. 10)$$

Avec C_l une constante élastique du matériau, F_a un facteur d'anisotropie du matériau, d le diamètre moyen de l'obstacle et f la fréquence de l'onde.

- **Domaine stochastique :** dans ce domaine, l'obstacle est caractérisé par un diamètre moyen compris entre un tiers et trois fois la longueur d'onde ($\lambda/3 < d < 3\lambda$). Un mécanisme de diffraction entre l'onde incidente et l'obstacle est responsable de la diffusion. Le coefficient de diffusion s'écrit :

$$\alpha_d = C_2 F_a d f^2 \quad (Eq.I. 11)$$

Avec C_2 une constante élastique du matériau.

- **Domaine géométrique :** dans ce domaine, l'obstacle est caractérisé par un diamètre moyen supérieur à trois la longueur d'onde ($d > 3\lambda$). Les mécanismes de réflexion et de transmission aux interfaces des obstacles sont à l'origine de la diffusion. Le coefficient de diffusion est indépendant de la fréquence et s'écrit :

$$\alpha_d = C_3 F_a \frac{1}{d} \quad (Eq.I. 12)$$

Avec C_3 une constante élastique du matériau.

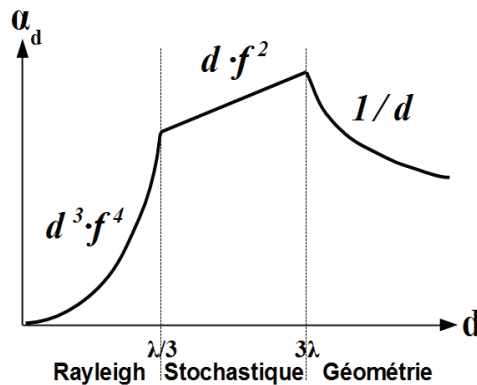


Figure.I.15. Les trois domaines d'atténuation par diffusion en fonction de la taille de l'obstacle.

2.4.2. Absorption

Le phénomène d'absorption résulte de la transformation de l'énergie mécanique en énergie thermique et est relié à la viscosité du milieu. La dissipation de l'énergie mécanique en chaleur est due aux pertes thermoélastiques ainsi qu'à la non-linéarité entre la contrainte et le déplacement de la matière. Dans les solides, le coefficient d'absorption est proportionnel au carré de la fréquence des ondes, inversement proportionnel à la masse volumique et au cube de la vitesse des ondes. Ceci implique que l'absorption augmente avec la fréquence. Ce type d'atténuation diminue l'énergie émise par les échos provenant de défauts ou des autres faces de la pièce (aussi appelés échos de fond). Il est donc nécessaire d'amplifier le signal enregistré ou de diminuer la fréquence des ondes émises pour étudier le matériau.

La loi de l'atténuation de l'amplitude est décrite par la relation :

$$A=A_0\exp(-\alpha d) \quad (Eq.I. 13)$$

Par conséquent, α est l'atténuation totale sur la distance d et peut être exprimé en Neper par mètre (Np/m) :

$$\alpha=\frac{1}{d}\ln\left(\frac{A_0}{A}\right) \quad (Eq.I. 14)$$

3. APPLICATIONS AUX MATERIAUX POLYMERES SEMI-CRISTALLINS

3.1. ÉMISSION ACOUSTIQUE

La technique d'EA a déjà été utilisée avec succès dans de nombreuses études pour caractériser les mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissant au cours de la déformation plastique et à la rupture de matériaux céramiques, métalliques et composites [BAR03, MAI12, MAI14]. Il découle de l'ensemble des travaux réalisés sur ces matériaux que de nombreux mécanismes sont à l'origine de la libération d'énergie acoustique. Parmi ces mécanismes, nous pouvons citer les mouvements de dislocations [KIE76], la transformation martensitique [PAS75], la cavitation [COL96], la décohésion entre la matrice et les charges [HAS03], le délaminage [BEN99] ou encore des mécanismes associés à la rupture [BER95].

L'étude de la déformation plastique des matériaux polymères a fait l'objet d'un grand nombre de publications scientifiques. Cependant, l'essentiel de ces travaux concerne les polymères thermodurcissables et les mélanges de polymères [BOH00, QIA83]. Ces études montrent qu'une forte activité acoustique est généralement observée au cours des essais de traction, en particulier lors de la rupture des matériaux. Les mécanismes de fissurations et de décohésion interfaciale sont classiquement associés aux signaux d'EA détectés.

Aucune étude ne fait état de l'enregistrement de signaux d'EA au cours de la déformation d'élastomères.

3.1.1. Cristallisation

Des études menées par Galeski *et al.* [GAL87, GAL90] ont montré que des signaux d'EA peuvent être détectés lors du refroidissement depuis l'état fondu des polymères semi-cristallins PP et POM. Les auteurs enregistrent l'activité acoustique en effectuant des paliers de températures au voisinage de la température de cristallisation de ces matériaux. Pour chaque palier de température, la détection de signaux démarre systématiquement autour du demi-temps de cristallisation. Par la suite, l'activité acoustique atteint son maximum avant de s'arrêter à la fin de la cristallisation (Figure.I.16.a). En outre, ces auteurs ont observé que le nombre de signaux collectés est maximum à la température de cristallisation. Ils ont pu aussi établir une corrélation entre l'activité acoustique enregistrée au cours du temps et la formation de quadruple liaisons associées à la formation de micro-cavités entre les sphérolites au cours de la

cristallisation (Figure.I.16.a et c). Des observations de microscopie optique ont permis de mettre en évidence la présence de micro-cavités entre les sphérolites après cristallisation du matériau. Cette corrélation entre l'activité acoustique et la formation de micro-cavités est renforcée par le fait qu'aucun signal ne fut détecté lors de la cristallisation de HDPE ne présentant pas de formation de cavitation. Les auteurs ont aussi effectué une analyse de l'activité acoustique et ont montré que la majorité des signaux possède une amplitude maximale autour de 43-44 dB pour le PP et de 32-33 dB pour le POM. La fréquence des signaux enregistrés est autour de 300 kHz.

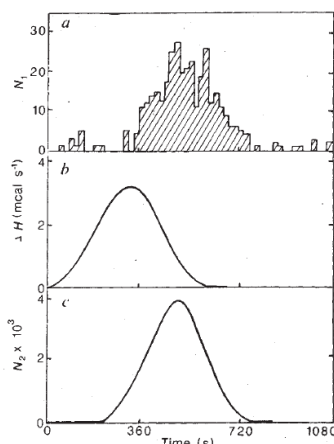


Figure.I.16. Corrélation entre (a) l'activité acoustique enregistrée, (b) la chaleur spécifique libérée et (c) la distribution temporelle de la formation de quadruples liaisons durant la cristallisation d'un PP à 120°C [GAL87].

3.1.2. Suivi de la déformation plastique et de l'endommagement

Des nombreux auteurs se sont focalisés sur l'enregistrement des signaux d'EA libérés par des polymères semi-cristallins vitreux au cours d'essais de traction [BET82, BET83, QIA83, RON06]. Une des principales observations de ces auteurs est la faible activité acoustique enregistrée au cours de la déformation plastique et de l'endommagement de ces matériaux.

Grabec *et al.* [GRA76] et Koenczoel *et al.* [KOE86] ont enregistré des signaux d'EA lors de l'initiation et de la croissance de fissurations de polymères semi-cristallins vitreux au cours d'essais de traction.

La déformation plastique et l'endommagement du PET ont été étudiés récemment par Ronkay *et al.* [RON06]. Cette étude révèle une corrélation entre l'activité acoustique et la formation de la cavitation lors de la propagation de la striction sur les éprouvettes lors d'essais de traction. Ces auteurs montrent aussi que les signaux collectés possèdent une faible énergie.

Cependant, un nombre très limité de travaux s'est concentré à caractériser la déformation plastique et l'endommagement de polymères semi-cristallins, au-dessus de leur température de transition vitreuse, avec la technique d'EA.

Betteridge *et al.* [BET82] ont observé une très faible activité acoustique (6 signaux en moyenne) au cours d'essais de traction et de fluage sur des éprouvettes de PP. De plus, l'énergie acoustique moyenne des signaux d'EA enregistrés est de l'ordre de quelques dizaines d'attoJoules (10^{-18} J).

Qian *et al.* [QIA83] ont aussi enregistré l'activité acoustique au cours d'essais de traction sur une large gamme de polymères, incluant en particulier des éprouvettes de polymères semi-cristallins de PP et de Polyamides (PA), comme le montre les Figure.I.17.a et b. Un faible nombre de signaux est détecté au cours des essais sur ces deux matériaux. Dans le cas du PP, très peu de signaux sont détectés avant le seuil de plasticité tandis qu'une importante activité acoustique est observée à l'approche de la rupture. En revanche, les essais sur le PA montrent que la majorité des signaux est collectée avant le seuil de plasticité et une activité acoustique très diffuse est observée au cours de la déformation plastique du matériau. Cependant, les auteurs n'établissent aucune corrélation entre les signaux enregistrés et les micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement.

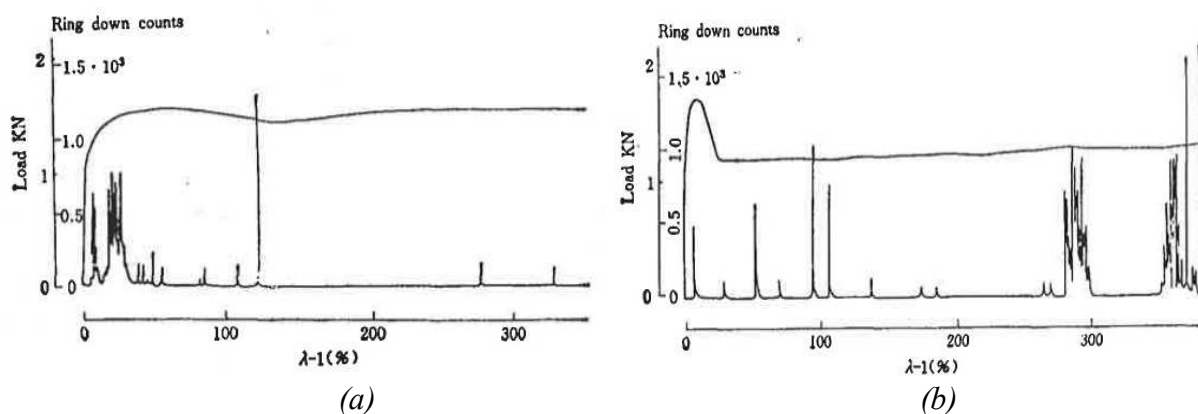


Figure.I.17. Activités acoustiques enregistrées lors d'essais de traction sur des éprouvettes de (a) PP et (b) PA [QIA83].

Cette faible activité acoustique a été confirmée par des études récentes [BOH00, KRO02]. La déformation plastique de PP isotactiques au cours d'essais de traction a été caractérisée par EA par Bohse [BOH00]. Cette étude montre que très peu de signaux sont enregistrés avant la rupture d'éprouvettes de PE et de PP. Krofta *et al.* [KRO02] indiquent, eux aussi, que le nombre de signaux d'EA collectés au cours d'essais de traction sur des éprouvettes de PP est très faible. Ces auteurs observent que l'activité acoustique est maximale autour du seuil de plasticité. En revanche, cette dernière est fortement réduite lors de la propagation de la striction le long de l'éprouvette, et de nombreux signaux sont enregistrés lors de la rupture du matériau.

Ainsi, les travaux issus de la littérature mettent clairement en évidence qu'une faible activité acoustique est observée au cours de la déformation plastique des polymères semi-cristallins. La rupture, quant à elle, est très émissive en signaux d'EA. Il est important de noter qu'aucune des études réalisées ne mentionne la localisation de signaux sur les éprouvettes. De plus, aucune analyse de signal n'a été effectuée pour tenter de différencier les signaux d'EA. Par conséquent, des doutes subsistent concernant l'origine des signaux détectés. Les données disponibles ne permettent donc pas de savoir clairement si les signaux enregistrés proviennent de sources issues de la déformation plastique et/ou de l'endommagement du matériau ou s'ils sont des artefacts tels que du bruit ou des glissements dans le montage expérimental. À ce stade, il n'est donc pas avéré que les signaux détectés proviennent bien de la déformation plastique et/ou de l'endommagement des polymères semi-cristallins. De plus, la corrélation entre les signaux et les micro-mécanismes de déformation n'est pas établie. Enfin, l'effet de la microstructure, en particulier l'influence du taux de cristallinité sur l'activité acoustique, n'a jamais été étudié.

3.2. CONTROLE PAR ULTRASONS

3.2.1. Propagation et atténuation des ondes US

À l'échelle macroscopique, les polymères semi-cristallins sont des matériaux homogènes et isotropes. Par conséquent, les ondes US de basses fréquences, c'est-à-dire de longueur d'onde bien supérieure aux dimensions des lamelles cristallines et amorphes ou des sphérolites, ne rencontrent pas d'hétérogénéités et d'obstacles sur leur trajet dans le milieu. Ainsi, l'atténuation des ondes US par diffusion est négligeable devant celle par absorption.

Wu [WU96] a étudié la propagation d'ondes US de volume (longitudinale et transversale) de fréquences comprises entre 2,2 et 7,6 MHz dans des HDPE et LDPE. Cet auteur a montré une forte dispersion d'atténuation des ondes US, c'est-à-dire qu'elle dépend de la fréquence, et est proportionnelle à la fréquence. De plus, il met en évidence que l'atténuation est très élevée dans ces matériaux. En effet, cet auteur a observé que dans le cas du HDPE, l'atténuation des ondes longitudinales et transversales à 5 MHz est respectivement de 10 et 100 dB/cm, tandis que dans le LDPE, elle est respectivement de 27 et 110 dB/cm. Ainsi, l'atténuation des ondes US dans les polymères semi-cristallins est de l'ordre de 100 à 1000 fois supérieure à celle couramment observée dans les métaux [PLO06]. De plus, il est à noter qu'à partir de ces résultats, nous constatons que l'atténuation des ondes longitudinales est plus faible que celle des ondes transversales, et que celle-ci dépend de la microstructure du PE.

Yamaguchi *et al.* [YAM99] ont aussi observé une forte atténuation des ondes US se propageant à la surface d'un PP. En effet, ces auteurs ont montré que l'atténuation à 300 kHz (fréquence comprise dans le domaine classique de l'EA) est de l'ordre de 26 dB/cm dans le PP à la température de 25°C. Ces auteurs ont aussi mis en évidence que l'atténuation augmente significativement avec la température (Figure.I.18). Ainsi, ils ont observé que l'atténuation des ondes US est respectivement de 26, 35 et 43 dB/cm pour des températures de 25, 60 et 80°C. L'augmentation de l'atténuation des ondes US longitudinales en fonction de la température a aussi été étudiée par Datta *et al.* [DAT78] sur un PP pour des fréquences comprises entre 15 et 35 MHz. Guney [GUN05] a observé la même augmentation de l'atténuation avec la température pour des ondes US longitudinales et transversales à 2 MHz dans un PVDF.

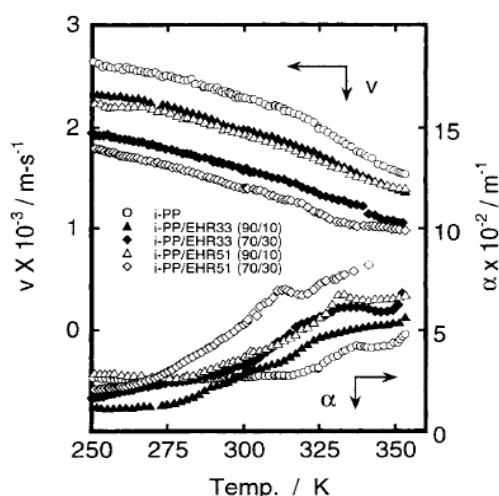


Figure.I.18. Evolution de l'atténuation et de la vitesse des ondes US en fonction de la température pour un PP et des mélanges PP/EHR (copolymère éthylène-1-héxène) [YAM99].

En revanche, lorsque la longueur d'onde est de l'ordre des dimensions des lamelles cristallines et amorphes ou des sphérolites, les ondes US « voient » un matériau hétérogène et, l'atténuation par diffusion ne peut plus être négligée, comme l'ont montré North *et al.* [NOR77] en étudiant la propagation d'ondes US de fréquences supérieures à 100 MHz dans plusieurs polymères semi-cristallins.

À partir d'un modèle analytique complexe sur la propagation des ondes US dans un PE, Maleki *et al.* [MAL09] ont montré que la diffusion des ondes longitudinales et transversales augmente significativement avec la fréquence. Ces auteurs ont aussi montré que l'atténuation par diffusion augmente pour des ondes longitudinales lorsque le taux de cristallinité du matériau augmente, tandis que l'atténuation par diffusion diminue pour des ondes transversales. Cependant, les auteurs précisent que ces résultats n'ont pas pu être vérifiés expérimentalement.

En ce qui concerne la vitesse de phase des ondes US de volume, Wu [WU96] a montré que celles-ci sont peu dispersives. En revanche, de nombreux auteurs [DAV62, SCH59, WU96, YAM99] ont mis en évidence à la fois l'influence de la température et du taux de cristallinité du matériau sur la vitesse de propagation de différents types d'ondes (Figure.I.19).

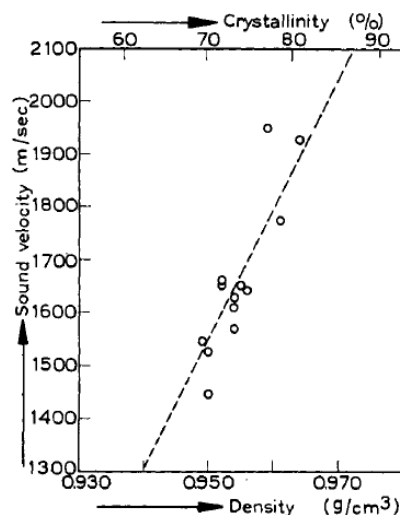


Figure.I.19. Vitesse des ondes US en fonction de la densité et du taux de cristallinité dans une barre de PE [DAV62].

À partir des vitesses des ondes longitudinales et transversales, Schuyer [SCH59] a réussi à déterminer plusieurs constantes élastiques de PE de cristallinités variées, comme le montre la Figure.I.20.

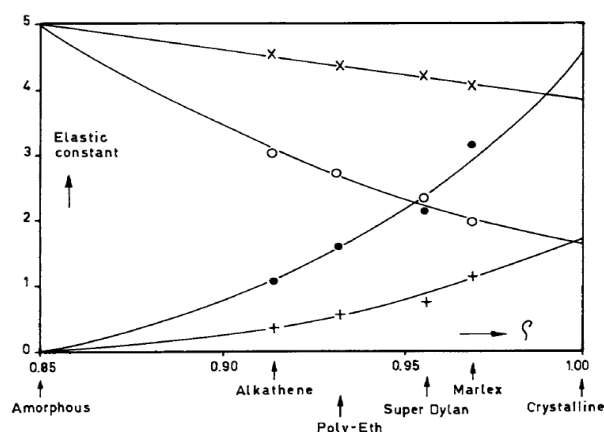


Fig. 4. Elastic constants of polyethylene versus density at 2 Mcycles/sec. and 20°C. (O), $\kappa \times 10^{11}$ (cm.²/dyne); (●), $E \times 10^{-10}$ (dyne/cm.²); (+) $G \times 10^{-10}$ (dyne/cm.²); (x), $\sigma \times 10$.

Figure.I.20. Constantes élastiques de différents PE en fonction de la densité. Module d'Young (.), module d'élasticité isostatique (o), module de cisaillement (+) et coefficient de Poisson (x).

3.2.2. Suivi de la déformation plastique et de l'endommagement

La technique de contrôle par ondes US a été utilisée avec succès dans de nombreux travaux pour caractériser la déformation plastique et l'endommagement de matériaux métalliques et composites [HIK56, HIK62, KOB03, MAI14]. Ces études ont permis de mettre en évidence qu'une forte diminution des vitesses de phase et une augmentation significative de l'atténuation des ondes US lorsque des mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissent au sein du matériau, ce qui se traduit par un effondrement des propriétés élastiques.

Certains auteurs se sont concentrés sur l'étude de l'évolution des propriétés élastiques des polymères semi-cristallins vitreux à partir de mesures US *ex situ* [CHO85, LEV97].

Cependant, peu d'auteurs se sont attelés à l'étude de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins, au-dessus de leur température de transition vitreuse, à l'aide de la technique de contrôle par ondes US. Néanmoins, Datta *et al.* [DAT78] ont effectué des mesures US *ex situ* sur des films de PP afin d'en caractériser la déformation plastique et l'endommagement perpendiculairement à la direction de traction. En utilisant des ondes longitudinales et transversales de fréquences comprises entre 15 et 35 MHz, les auteurs ont montré que dans un large domaine de déformation incluant le domaine élastique et une grande partie du domaine plastique, l'atténuation des ondes est proportionnelle à la fréquence (Figure.I.21.b). En revanche, aux très grandes déformations l'atténuation augmente significativement et devient proportionnelle au carré de la fréquence (Figure.I.21.b). Selon ces auteurs, ce changement de comportement de l'atténuation peut être attribué à une restriction des mouvements des chaînes macromoléculaires dans la structure fibrillaire. En revanche, l'évolution des vitesses des ondes longitudinales et transversales sont différentes en fonction du taux de déformation du matériau (Figure.I.21.a). En effet, à 25MHz, les auteurs observent que la vitesse des ondes longitudinales décroît légèrement au cours de la déformation du matériau, alors que la vitesse des ondes transversales augmente significativement.

Yamaguchi *et al.* [YAM99] ont, quant à eux, suivi l'évolution *in situ* de la vitesse et de l'atténuation d'ondes US de fréquence 300 kHz (fréquence comprise dans le domaine classique de l'EA) se propageant dans l'axe de traction à la surface d'une fine éprouvette de PP isotactique.

Les auteurs ont observé qu'au cours de la déformation élastique et anélastique du matériau, l'atténuation des ondes augmente tandis que leur vitesse diminue (Figure.I.22). En revanche, dès le seuil de plasticité, le comportement des ondes change soudainement. En effet, tout au long de la déformation plastique du matériau, l'atténuation diminue tandis que la vitesse augmente (Figure.I.22). Les auteurs attribuent cette diminution de l'atténuation des ondes US à l'orientation des chaînes dans l'axe de traction durant l'essai. Des mesures US *in situ* réalisées sur des films de HDPE et de LDPE au cours d'essais de traction cycliques montrent aussi une diminution de l'atténuation avec l'orientation des chaînes dans l'axe de traction [TAN89, TAN91, NIT91].

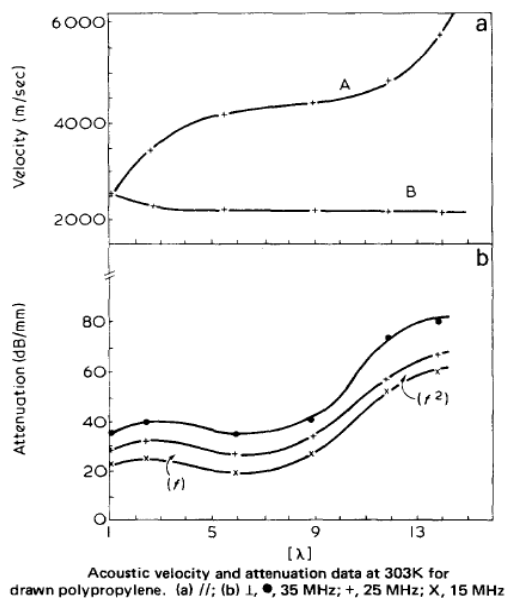


Figure.I.21. Mesures US *ex situ* (a) des vitesses longitudinales et transversales, et (b) de l'atténuation d'ondes de fréquences comprises entre 15 et 35 MHz, se propageant à travers un film de PP à différents stades de la déformation lors d'un essai de traction à la température de 30°C [DAT78].

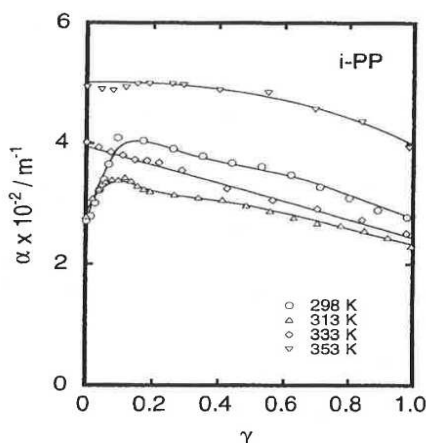


Figure.I.22. Variation du coefficient d'atténuation durant un essai de traction d'un PP pour différentes température [YAM99].

À partir des données disponibles dans la littérature scientifique, il est très clairement établi que l'atténuation des ondes US dans les polymères semi-cristallins est très élevée et dépend de la microstructure du matériau. De même, la vitesse des ondes est relativement lente dans ces milieux et semble également dépendre de sa microstructure.

Au cours d'un essai de traction, les rares études réalisées montrent que, lors du passage de la déformation élastique à la déformation plastique du matériau, le comportement de la propagation des ondes US se trouve modifier quelque-soit le type d'onde utilisé. Cependant, ces études ne montrent pas l'influence des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement sur la propagation des ondes. De même, aucune discrimination entre les effets liés à l'évolution de la géométrie (allongement des éprouvettes et striction) et des effets associés à la déformation plastique et à l'endommagement du matériau n'est effectuée. Par conséquent, nous ne connaissons pas l'influence de chacun de ces deux types d'effets, pris séparément, sur la propagation des ondes et sur les mesures US réalisées. Cependant, cette tâche s'avère délicate car avec la déformation plastique et l'endommagement du matériau, et l'allongement des chaînes amorphes dans l'axe de traction, le milieu devient progressivement hétérogène et anisotrope. La propagation des ondes évolue avec les modifications structurales du matériau, ce qui rend complexe le suivi de l'état de sa microstructure et de l'évolution de son anisotropie en temps réel.

Les travaux réalisés se contentent de caractériser la déformation plastique et l'endommagement des matériaux à l'aide d'un seul type d'onde (volume ou plaque). Il serait donc intéressant d'avoir des données avec différents types d'ondes sur une même géométrie afin de comparer les résultats. De même, une étude multi-fréquentielle comprise dans le domaine classique de l'EA serait très intéressante pour avoir une meilleure compréhension de la propagation des ondes US au cours de la déformation.

En outre, aucune étude ne s'est focalisée sur l'effet de la microstructure sur des mesures US *in situ* pour étudier la plasticité et l'endommagement des polymères semi-cristallins.

4. CONCLUSIONS ET OBJECTIFS DE LA THESE

Nous avons vu que l'ensemble des mécanismes apparaissant au cours de la déformation plastique et de l'endommagement des polymères semi-cristallins, au-dessus de leur température de transition vitreuse, lors d'un essai de traction uniaxiale a fait l'objet de nombreuses études, ces quarante dernières années. De multiples techniques d'analyses permettent d'observer et de détecter ces mécanismes permettant de connaître leur chronologie d'apparition et de prédire leur évolution. Cependant, l'amorçage de ces mécanismes est difficile à observer et requiert l'utilisation de techniques d'analyses très complexes, souvent destructives, très coûteuses, et nécessitant le plus souvent la préparation des échantillons à étudier. Ainsi les techniques d'analyses non-destructives fondées sur la détection et la propagation d'ondes US s'avèrent être une excellente alternative pour l'étude de la déformation plastique, de l'endommagement et de la rupture des matériaux.

La technique de **contrôle ultrasonore** est fondée sur la propagation d'ondes US, issues d'une source entièrement contrôlée, dans un matériau à étudier. Cette méthode d'analyse est utilisée pour caractériser les propriétés élastiques des matériaux car la propagation des ondes US

dépend directement des propriétés du milieu. Ainsi, de nombreuses études ont permis de suivre l'effondrement des propriétés élastiques de matériaux métalliques et composites au cours de la déformation plastique et de l'endommagement. Des auteurs ont effectué des mesures sur les polymères semi-cristallins, au-dessus de leur température de transition vitreuse, et ont montré que l'atténuation des ondes US dans ces matériaux est très élevée et dépend du taux de cristallinité. Cette forte atténuation peut expliquer le peu de travaux s'étant attelés à l'étude de la déformation plastique et l'endommagement des polymères semi-cristallins. Néanmoins, un changement de comportement de la propagation des ondes US est généralement observé lors du passage de la déformation élastique à la déformation plastique des matériaux, quel que soit le type d'ondes et la fréquence. Cependant, de nombreuses interrogations subsistent quant aux résultats disponibles. En effet, les auteurs ne tiennent pas compte des effets géométriques, par conséquent nous ne connaissons pas leur influence sur les mesures réalisées, en particulier après le seuil de plasticité à partir duquel une striction se forme sur l'éprouvette. De même, ces études ne montrent pas l'influence des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement sur les paramètres US. Enfin, l'influence de la microstructure du matériau n'a jamais été étudiée de manière approfondie.

Par conséquent, nous tenterons de répondre aux questions suivantes :

- Comment évoluent les paramètres des ondes US en fonction de la distance parcourue dans les matériaux non déformés? Influence de la fréquence? De la microstructure?
- Quel est le comportement de différents types d'ondes dans le domaine de déformation élastique lors d'un essai de traction?
- Quelle évolution observe-t-on de l'ensemble des paramètres des ondes US au cours de la déformation plastique et de l'endommagement?
- Quel est l'effet de la géométrie sur la propagation des ondes US?
- Quels sont les effets des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement sur la propagation des ondes US?
- Peut-on suivre en temps réel l'évolution de l'état de la microstructure des matériaux? Anisotropie?
- Quelle est l'influence de la chimie du polymère semi-cristallin sur la propagation des ondes US?

La technique d'**émission acoustique** est fondée sur la détection d'ondes élastiques transitoires générées par un matériau au cours de sa déformation plastique et de son endommagement. Cette technique a rarement été utilisée pour étudier la plasticité des polymères semi-cristallins, au-dessus de leur température de transition vitreuse, car l'atténuation des ondes US dans ces matériaux est très élevée. Cependant, des études, effectuées sur des matériaux métalliques, composites et polymères semi-cristallins vitreux, ont montré que des mécanismes associés aux mouvements de dislocations, à la cavitation, à la transformation martensitique, ou encore aux ruptures de fibres libèrent de l'énergie acoustique. Ces mécanismes apparaissant lors de la déformation plastique et de l'endommagement des polymères semi-cristallins, nous pouvons donc espérer que les signaux générés par ces mécanismes peuvent être collectés en dépit de l'atténuation US dans ces milieux. Malheureusement, la faible activité acoustique généralement observée lors des essais de traction rend difficile une étude statistique. Les travaux disponibles ne font pas état de la localisation de signaux d'EA. Par conséquent, il est difficile de savoir si les signaux enregistrés proviennent des mécanismes de plasticité et d'endommagement

ou de sources parasites (bruits). Ainsi, aucune corrélation entre les signaux et les micro-mécanismes apparaissant dans le matériau n'a été effectuée jusqu'à maintenant. De plus, aucune étude ne s'est focalisée sur l'effet de la microstructure des matériaux sur l'activité acoustique.

Par conséquent, nous tenterons de répondre aux nombreuses questions subsistantes :

- Quelle est l'origine des signaux détectés : mécanismes de plasticité et d'endommagement des matériaux ou artefacts (bruits, glissements, ...) ?
- Quel est l'influence de la vitesse de déformation sur l'activité acoustique de ces matériaux ?
- Peut-on enregistrer des événements d'EA ?
- Quelle est la signature acoustique (énergie, amplitude, durée, contenu fréquentiel, ...) ?
- Peut-on corréler l'activité acoustique enregistrée avec les micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement ?
- Observe-t-on une activité acoustique avant le seuil de plasticité ? Peut-on détecter des signaux associés aux prémices de la plasticité et de l'endommagement du matériau ?
- Quelle est l'influence de la microstructure des matériaux sur l'activité acoustique ? Influence du taux de cristallinité ? Influence du mécanisme de cavitation ?
- Quelle est l'influence de la chimie du polymère semi-cristallin sur l'activité acoustique ?
- Peut-on déterminer les caractéristiques des sources d'EA ?

Les techniques d'EA et de contrôle par ondes US ont donc été employées dans cette thèse afin d'obtenir de nouvelles informations sur l'amorçage des mécanismes de plasticité et d'endommagement de polymères semi-cristallins lors d'essais de traction uniaxiale.

CHAPITRE II

TECHNIQUES ET MATERIAUX

1. TECHNIQUES	51
1.1. ANALYSE MICROSTRUCTURALE: ANALYSE ENTHALPIQUE DIFFERENTIELLE	51
1.1.1. Définition	51
1.1.2. Instrumentation et protocole expérimental	52
1.2. ESSAIS MECANQUES: TRACTION	52
1.2.1. Instrumentation	52
1.2.2. Éprouvette de traction	52
1.3. TECHNIQUES D’EVALUATION NON DESTRUCTIVES	53
1.3.1. Émission acoustique	53
1.3.1.1. Capteurs	54
1.3.1.2. Couplage et amplification	55
1.3.1.3. Système et paramètres d'acquisition	56
1.3.1.4. Localisation des sources d'EA	58
1.3.2. Contrôle ultrasonore	59
1.3.2.1. Définition	59
1.3.2.2. Instrumentation	60
1.3.2.3. Signaux générés	60
1.3.2.4. Capteurs et couplage	61
1.3.2.5. Dispositifs expérimentaux	62
1.3.2.6. Mesure de la vitesse de phase	63
1.3.2.7. Mesure de l'atténuation	66
2. MATERIAUX.....	70
2.1. CHOIX DES MATERIAUX	70
2.1.1. Polyéthylène.....	71
2.1.2. Polypropylène	71
2.1.3. Polyfluorure de vinylidène.....	71
2.2. ÉLABORATION: TRAITEMENTS THERMIQUES	71
2.2.1. Trempe	72
2.2.2. Traitement « isotherme »	72
2.3. MECANISMES DE FORMATION DE LA CAVITATION.....	75
3. CONCLUSION.....	75

Dans ce chapitre, nous présenterons les techniques d'analyses employées et les matériaux étudiés pour nos investigations.

Dans une première partie, nous décrirons la technique d'analyse enthalpique différentielle, les essais mécaniques de traction ainsi que les méthodes de contrôle non destructif utilisées pour étudier la déformation plastique et l'endommagement de polymères semi-cristallins.

Dans la seconde partie, nous présenterons les différents matériaux choisis pour nos travaux.

Enfin, une conclusion achèvera ce chapitre.

1. TECHNIQUES

1.1. ANALYSE MICROSTRUCTURALE: ANALYSE ENTHALPIQUE DIFFERENTIELLE

1.1.1. Définition

L'analyse enthalpique différentielle (AED), communément appelée DSC pour Differential Scanning Calorimetry, est une technique permettant de déterminer les transitions thermiques telles que la transition vitreuse, la fusion ou encore la cristallisation d'échantillons.

Lors d'une expérience de DSC, un échantillon du matériau à étudier et une référence, tous les deux encapsulés dans des coupelles en aluminium, sont placés dans un four puis soumis à une même histoire thermique. Les changements d'enthalpie et de chaleur spécifique dans l'échantillon à étudier conduisent à une différence de température entre l'échantillon et la référence. La température est mesurée par des thermocouples situés dans les chambres métalliques dans lesquelles sont disposées les capsules.

Le thermogramme obtenu représente l'évolution du flux de chaleur en fonction de la température : il est alors possible d'en déduire les modifications enthalpiques et les variations de la chaleur spécifique.

Cette technique a été utilisée pour déterminer la température de fusion des matériaux étudiés. Cette température est influencée par le taux de cristallinité dans le cas des polymères semi-cristallins. La fusion des lamelles cristallines se produit sur une large plage de température du fait de leur distribution en taille. Ainsi, la température de fusion T_f est définie au pic d'énergie maximale absorbée au cours de la fusion. La relation de Gibbs-Thomson [DAR93] permet de calculer la température de fusion T_f des lamelles cristallines d'épaisseur l_c :

$$T_f = T_f^0 \left(1 - 2 \frac{\sigma_e}{\Delta H_f^0 \rho_c l_c} \right) \quad (Eq.II. 1)$$

Avec T_f^0 correspond à la température de fusion d'une lamelle cristalline de taille infinie, σ_e représente l'énergie de surface du plan de repliement des chaînes et ρ_c la masse volumique du cristal.

Le taux de cristallinité massique est lié à l'enthalpie de fusion ΔH_f des matériaux étudiés par la relation :

$$\chi_c = \frac{\Delta H_f}{\Delta H_f^0} \quad (Eq.II. 2)$$

Où ΔH_f^0 représente l'enthalpie de fusion du matériau pour 100 % de cristallinité.

Dans le cas des matériaux que nous avons étudié, l'enthalpie de fusion pour 100 % de cristallinité est de 290 J/g pour le PE [WUN73], 165 J/g pour le PP [MON85] et 104,5 J/g pour le PVDF [NAK73].

1.1.2. Instrumentation et protocole expérimental

Toutes les analyses thermiques ont été réalisées sur une DSC7 de Perkin Elmer. Avant d'effectuer une mesure sur le matériau à étudier, une ligne de base puis une calibration de l'appareil à l'aide d'un échantillon d'indium sont réalisées afin de s'assurer du bon fonctionnement et du réglage de l'appareillage.

Nous avons effectué les mesures de DSC avec des rampes en température entre 20°C et 200°C à une vitesse de 10 °C/min. Les échantillons sont prélevés sous forme de petits copeaux sur les plaques des matériaux étudiés. La masse des échantillons étudiés est de l'ordre de 10 mg.

À partir des thermogrammes, nous avons déterminé le taux de cristallinité et la température de fusion des différents matériaux étudiés.

Le taux de cristallinité des matériaux est le plus souvent défini avec une incertitude de $\pm 2 \%$.

1.2. ESSAIS MECANIQUES: TRACTION

1.2.1. Instrumentation

Nous avons réalisé l'ensemble des essais de traction uniaxiale sur une machine MTS 1/ME équipée d'une cellule de force de 5 kN. Ces essais ont été effectués à température ambiante. Nous avons imposé plusieurs vitesses de déformation aux matériaux.

1.2.2. Éprouvette de traction

Les essais de traction ont été réalisés sur des éprouvettes haltères découpées dans une presse à chaud à une température d'environ 80 °C à l'aide d'un emporte-pièce. Les dimensions de la zone utile de l'éprouvette sont de 20 x 14 mm (Figure.II.1). L'épaisseur des éprouvettes de PE et PP est d'environ 6 mm, et de 3 mm pour les éprouvettes de PVDF.

Plusieurs vitesses de déplacement de la traverse supérieure de la machine de traction ont été testées : 1, 5, 10 et 40 mm/min, ce qui correspond pour les éprouvettes utilisées respectivement à des vitesses de déformation de $8,4 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, $8,3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ et $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$.

Pour l'étude de l'initiation de l'émission acoustique, nous avons utilisé la contrainte d'écoulement plastique correspondant à la valeur de la contrainte nominale associée au seuil de plasticité, notée σ_{max} (Figure.II.2), à partir des courbes de traction (contrainte et déformation nominales).

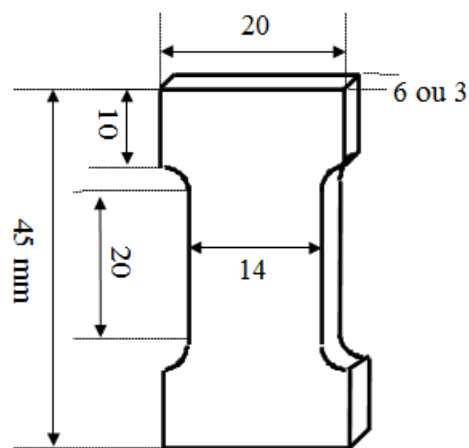


Figure.II.1. Dimensions des éprouvettes de traction.

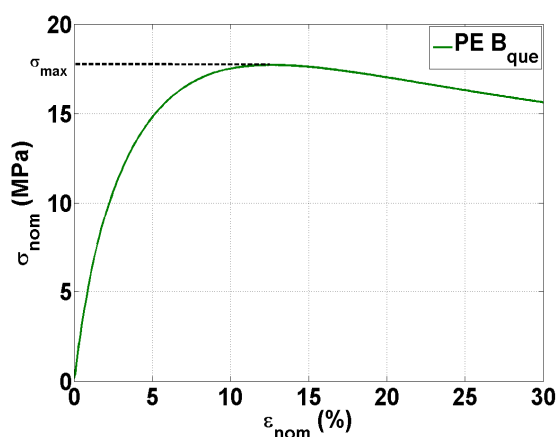


Figure.II.2. Détermination de la contrainte seuil à partir d'une courbe de traction.

1.3. TECHNIQUES D'EVALUATION NON DESTRUCTIVES

Les techniques de contrôle non destructif (CND) utilisées pour l'étude de la déformation plastique et de l'endommagement sont les techniques d'émission acoustique et de contrôle ultrasonore.

1.3.1. Émission acoustique

Nous avons utilisé la technique d'émission acoustique (EA) afin de détecter les ondes acoustiques issues des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissant au sein de polymères semi-cristallins lors d'essais de traction.

Ces ondes acoustiques sont enregistrées par des capteurs piézoélectriques positionnés à la surface du matériau à étudier. La détection de celles-ci n'est possible que si leur amplitude est supérieure au seuil de d'acquisition fixé afin d'éviter l'enregistrement de signaux issus du bruit ambiant.

Il existe deux types d'EA : continue et discrète. L'EA discrète (ou par salves) se caractérise par des formes d'ondes localisées dans le temps. L'énergie des salves est élevée comparée à celle de l'EA continue qui est caractérisée par des formes d'ondes à l'allure d'un bruit amplifié à cause du chevauchement de signaux d'EA dont l'amplitude et l'énergie moyenne sont les seuls paramètres mesurables. La Figure.II.3 représente un schéma de principe de la chaîne d'acquisition de signaux acoustiques par la technique d'EA.

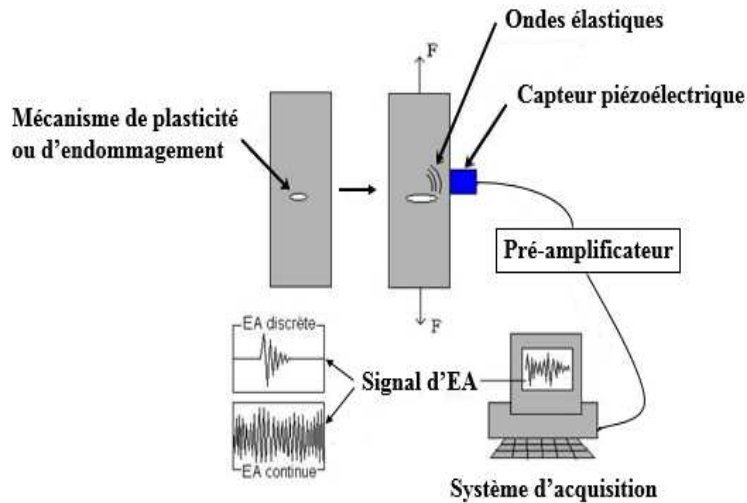


Figure.II.3. Schéma de principe de la chaîne d'acquisition des signaux d'EA.

1.3.1.1. Capteurs

La détection des ondes élastiques en surface du matériau est assurée par des capteurs piézoélectriques dont la fonction est de traduire les mouvements microscopiques de surface en signaux électriques. Les capteurs utilisés sont dits « résonnants » car ils possèdent une bande passante étroite présentant un pic de sensibilité autour de leur fréquence de résonance. Le principal avantage de ce type de capteurs est l'excellente sensibilité à la détection des signaux de faibles amplitudes dont le contenu fréquentiel est voisin de la fréquence pic de résonance. Cependant, il en résulte une forte modification de la forme du signal acoustique enregistré ainsi que de son contenu fréquentiel. Les capteurs « résonnants » sont majoritairement en céramique dont l'élément piézoélectrique est en PZT (Titano-Zirconate de Plomb).

Dans notre étude, un jeu de deux capteurs piézoélectriques Pico ont été choisis pour l'instrumentation des essais d'EA en raison de leur très faible encombrement (diamètre : 4 mm, hauteur : 4 mm et poids : 5 g). La Figure.II.4.a représente les courbes de sensibilité en réception des deux capteurs Pico utilisés (références S/N 3516 et S/N 3517) en fonction de la fréquence. La méthode employée pour la calibration des capteurs peut amener à des différences de sensibilités calculées. Ainsi, utiliser la moyenne des sensibilités en réception permet de s'affranchir des problèmes liés aux calculs. La fréquence de résonance de ces capteurs est située au voisinage de 500 kHz. Leur sensibilité en réception aux fréquences inférieures à 100 kHz est plus faible d'environ 30 dB qu'à celle obtenue à leur fréquence de résonance. En outre, ces capteurs ne sont pas sensibles uniformément sur toute leur surface, comme le montre la Figure.II.4.b Nous constatons que la sensibilité en réception est plus élevée au centre des capteurs. Entre le centre et le bord des capteurs, la différence de sensibilité est d'environ 15 dB, ce qui correspond à environ un facteur 6. Cette différence s'explique par le fait que l'élément piézoélectrique est collé sur les bords du boîtier métallique des capteurs limitant ainsi ses mouvements à l'inverse de son centre qui peut vibrer plus librement.

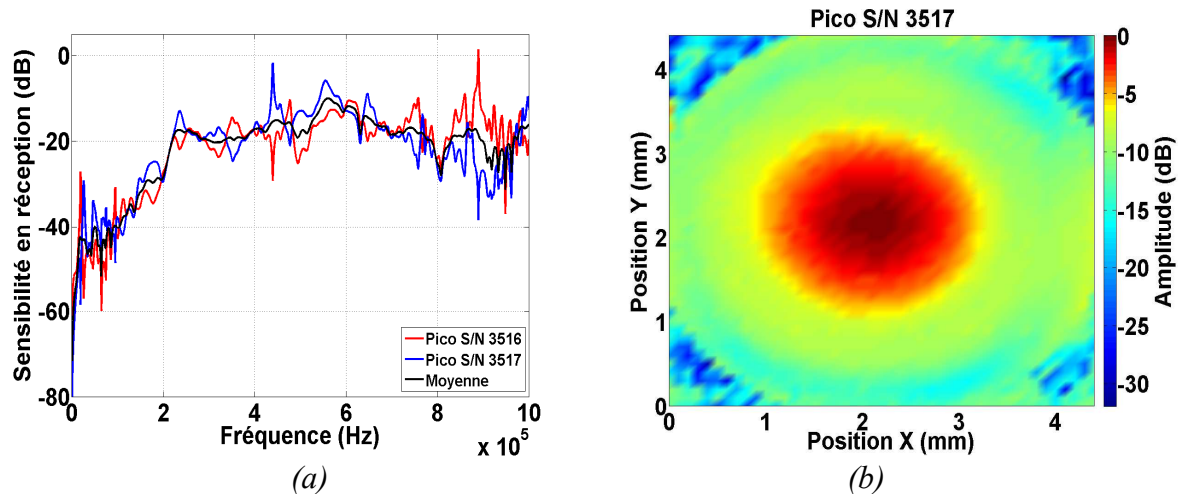


Figure II.4. (a) Courbes des sensibilités en réception des capteurs Pico utilisés (rouge et bleue) et leur moyenne (noire) en fonction de la fréquence. (b) Cartographie de leur sensibilité en amplitude sur la surface d'un Pico.

1.3.1.2. Couplage et amplification

Les capteurs d'EA sont posés à la surface de la pièce à étudier et la qualité de l'acquisition est conditionnée par le couplage avec le matériau. Dans le cadre de nos travaux, le couplant choisi est de la graisse à vide (High vacuum grease, Dow Corning), fréquemment utilisée [DEG95, DES05, MAI12]. Ce couplant peu visqueux présente l'avantage d'être facilement applicable sur les polymères semi-cristallins favorisant ainsi une bonne qualité de couplage. De même, la pression exercée sur le capteur doit demeurer constante tout au long de l'enregistrement afin d'avoir la même qualité de couplage et ainsi éviter l'acquisition de signaux parasites dû à des glissements du capteur sur la surface du matériau.

Afin de s'assurer que la qualité du couplage est correcte, avant le lancement d'une acquisition, celle-ci peut être évaluée à l'aide d'un test d'évaluation AST (Automatic Sensor Test). Ce test consiste en l'émission et la réception de signaux par de brusques coupures de l'alimentation électrique de chacun des capteurs. La qualité du couplage peut être jugée acceptable si la valeur des paramètres des signaux reçus par chaque capteur est proche. Ce test est complété par l'émission de sources d'EA artificielles afin de vérifier que la sensibilité de chacun des capteurs est bonne et que l'ensemble du montage ne présente pas de défaillances.

La transcription des déplacements microscopiques de surface en signal électrique par le capteur est de très faible amplitude (de l'ordre de quelques millivolts). Il est donc nécessaire d'utiliser un pré-amplificateur en sortie du capteur afin d'amplifier le signal électrique. Outre sa fonction d'amplification, le pré-amplificateur joue aussi le rôle de filtre analogique sur la bande de fréquence 20-1200 kHz, au-delà de laquelle la pente du filtre est de 12 dB par octave, ce qui signifie que l'amplitude du signal est divisée par 4 lorsque la fréquence est multipliée par 2.

Les pré-amplificateurs utilisés sont de type 2/4/6 (Physical Acoustics Corporation, Mistras Group) avec un gain de +60 dB, ce qui correspond à une multiplication par 1000 de l'amplitude du signal enregistré.

1.3.1.3. Système et paramètres d'acquisition

Le système d'acquisition utilisé pour l'acquisition des signaux d'EA est un système PCI-2 (Peripheral Component Interconnect), développé par Physical Acoustics Corporation, Mistras Group. Ce système, muni de deux voies d'acquisition, permet d'enregistrer et de traiter en temps réel des signaux d'EA numérisés. La fréquence d'échantillonnage utilisée pour l'enregistrement des signaux est ici de 5 MHz afin de couvrir l'ensemble du domaine fréquentiel d'étude. Lorsque l'amplitude du signal dépasse le seuil d'acquisition, fixé dans notre cas à environ 15,8 mV (24 dB), alors celui-ci est enregistré. Afin de numériser correctement les signaux, il faut régler au préalable les fenêtres d'acquisition temporelles glissantes du système d'enregistrement (Tableau.II.1). Ces fenêtres, déterminées à l'aide de la génération de sources d'EA artificielles suivant la méthode des cassures de mines de Hsu-Nielsen [HSU81], sont :

- PDT (Peak Definition Time) : constante de temps qui permet de définir le pic d'amplitude maximale;
- HDT (Hit Definition Time) : constante de temps qui permet de déterminer la fin d'une salve;
- HLT (Hit Lockout Time) : constante de temps correspondant à une plage d'inhibition de l'acquisition permettant d'inhiber les échos.

PDT	200 μ s
HDT	400 μ s
HLT	1000 μ s
Seuil d'acquisition	15,8 mV

Tableau.II.1. Paramètres d'acquisition du système PCI-2.

Ces fenêtres d'acquisition permettent la détermination en temps réel de paramètres temporels du signal enregistré :

- l'amplitude maximale du signal (en Volt);
- la durée du signal : le temps écoulé entre le premier et le dernier dépassement du seuil d'acquisition;
- le temps de montée : le temps écoulé entre le premier franchissement de seuil et le pic d'amplitude maximale du signal;
- l'énergie du signal (en aJ) : proportionnelle à l'intégrale au carré du signal sur sa durée $E \propto \int V^2(t) \cdot dt$ avec $V(t)$ la tension (l'amplitude) du signal en fonction du temps;
- le nombre de coups : le nombre de franchissements de seuil sur la durée du signal.

Notons que parmi tous ces paramètres, seule l'amplitude maximale du signal est indépendante du seuil et des fenêtres d'acquisitions temporelles glissantes (PDT, HDT et HLT). Ces paramètres d'acquisition sont donc très importants et sont pertinents uniquement dans les conditions dans lesquelles ils ont été déterminés.

À partir des formes d'ondes, il est possible de déterminer le contenu fréquentiel du signal acoustique $s(t)$ en calculant sa Transformée de Fourier $S(f)$:

$$S(f) = \int s(t) e^{-2i\pi ft} dt \quad (Eq.II. 3)$$

Les transformées de Fourier rapides ont été calculées à l'aide de la fonction *FFT* (Fast) du logiciel de calcul scientifique MatLab. La fréquence moyenne f_m et la fréquence pic f_p peuvent être calculées sur l'ensemble du domaine fréquentiel choisi (Figure.II.5.b).

La fréquence moyenne correspond à la fréquence pondérée par l'amplitude du spectre pour chaque fréquence f sur l'intervalle choisi $]0, f_{max}]$.

La fréquence pic du spectre correspond à la fréquence associée au maximum de l'amplitude du spectre dans le domaine fréquentiel choisi. Ces fréquences peuvent être calculées à partir des relations suivantes :

$$f_m = \frac{\sum f * A(f)}{\sum A(f)} \quad (Eq.II. 4)$$

$$f_p = \max(A(f)) \quad (Eq.II. 5)$$

Les paramètres fréquentiels ont été calculés à partir des formes d'ondes des signaux.

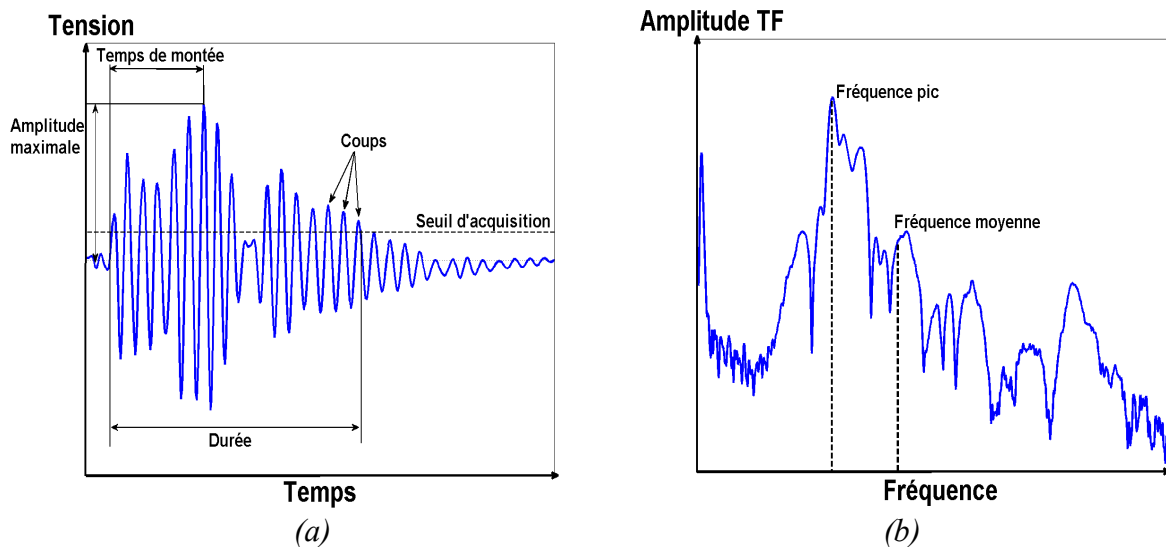


Figure.II.5. Principaux paramètres (a) temporels et (b) fréquentiels déterminés à partir d'un signal d'EA.

L'ensemble des paramètres d'EA utilisés sont résumés dans le Tableau.II.2 avec leur unité et leur abréviation respective.

Paramètres	Symbole	Unité
Amplitude	A	V et dB
Énergie	E	aJ
Durée	dt	μs
Temps de montée	t_m	μs
Nombre de coups	N_c	-
Fréquence moyenne	f_m	kHz
Fréquence pic	f_p	kHz

Tableau.II.2. Exemple de paramètres d'EA.

1.3.1.4. Localisation des sources d'EA

Connaissant la position des capteurs et la vitesse de propagation V des ondes dans le matériau, il est possible de localiser la position des sources d'EA à partir de la mesure des temps d'arrivée (t_1, t_2, \dots) des signaux issus des sources aux capteurs. La détermination des temps d'arrivée a été obtenue à partir du premier dépassement du seuil d'acquisition lorsque deux capteurs sont utilisés, la localisation est dite linéaire et la position des sources peut être déterminée par la relation :

$$x = V(t_1 - t_2) \quad (Eq.II. 6)$$

La position des sources d'EA permet de connaître la répartition spatio-temporelle des signaux acoustiques et de les relier à la déformation plastique et à l'endommagement du matériau [MAE98].

Un autre avantage de la localisation est d'éliminer les sources d'EA apparaissant en dehors de la zone comprise entre les deux capteurs, c'est-à-dire dans notre en dehors de la zone de déformation du matériau. La différence de temps d'arrivée des trains d'ondes sur chaque capteur est comparée à la différence maximale de temps d'arrivée $\Delta t_{max} = D/V$ avec D la distance entre les deux capteurs. Par conséquent, les sources d'EA dont la différence de temps d'arrivée est inférieure à Δt_{max} proviennent du matériau. La vitesse de propagation des ondes a été déterminée par des mesures ultrasonores.

Le montage expérimental ainsi que la disposition des capteurs d'EA sur les éprouvettes de traction sont présentés sur la Figure.II.6.

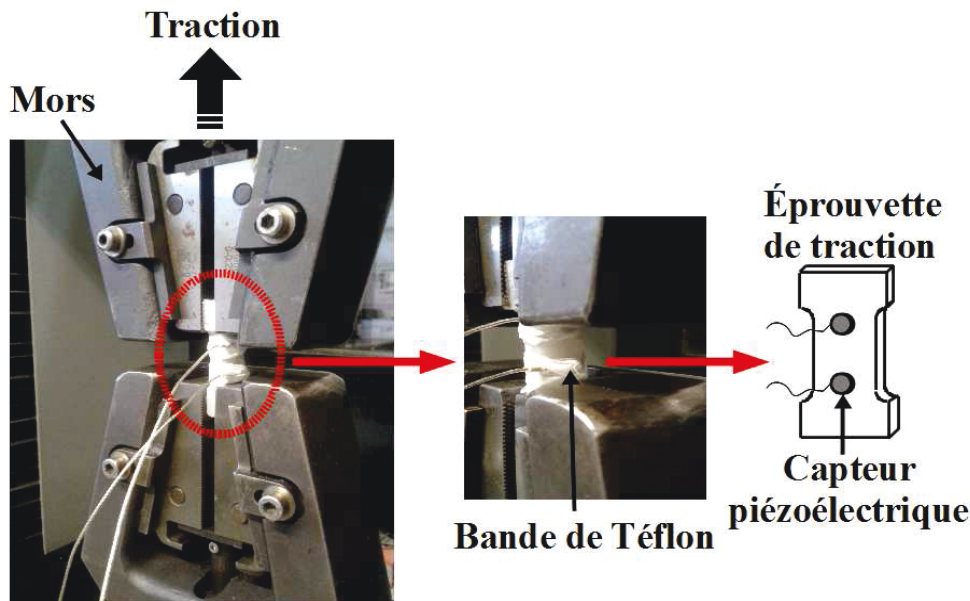


Figure.II.6. Vue du montage d'EA sur la machine de traction.

1.3.2. Contrôle ultrasonore

Nous nous sommes servis de la technique de contrôle US afin étudier la propagation des ondes guidées et des ondes de volume dans des polymères semi-cristallins à l'état non déformé et pour suivre leur déformation plastique et l'endommagement au cours d'essais de traction. Cette technique nous a également permis de montrer l'influence de la géométrie des matériaux et des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement sur la propagation des ondes.

1.3.2.1. Définition

Cette technique se caractérise par l'émission d'ondes US à la surface d'un matériau à étudier à partir d'une source artificielle, entièrement contrôlée et parfaitement reproductible. Les caractéristiques du signal US ayant transité dans le matériau dépendent directement des propriétés élastiques de celui-ci, ce qui permet ainsi de rendre compte de l'évolution de l'état de sa microstructure au cours d'un essai de traction.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé la technique de contrôle par ondes US suivant les méthodes au contact et en immersion dans l'eau :

- Les méthodes **au contact** sont les plus simples à mettre en œuvre et nécessitent le positionnement des capteurs directement sur la structure à ausculter par l'intermédiaire d'une fine couche de couplant. La précision et la reproductibilité des mesures dépendent fortement du couplage entre les capteurs et le matériau. Par conséquent, il est nécessaire d'avoir une attention particulière au positionnement des capteurs lors du montage expérimental afin que le couplage soit le meilleur possible et que son influence sur les mesures soit minimisée.
- Les méthodes de mesure **en immersion dans l'eau** permettent de s'affranchir des problèmes liés au couplage. Les capteurs et la pièce à étudier sont plongés dans une cuve remplie d'eau afin de permettre la propagation des ondes US. L'atténuation des ondes US dans l'eau est très faible à température ambiante pour des fréquences relativement basses ($\alpha_{\text{eau}} \sim 1 \text{ dB/m}$ à 2,25 MHz [KAY95]).

Les deux types d'ondes utilisés pour nos investigations sont les **ondes guidées (ondes de Rayleigh et ondes de Lamb)** et les **ondes de volume**. Les premières se propagent le long de la zone utile des éprouvettes alors que les secondes transitent dans le sens de l'épaisseur.

1.3.2.2. Instrumentation

La plupart du temps, le matériel utilisé pour nos travaux est le système d'acquisition PCI2, identique à celui utilisé pour la détection des signaux d'EA. Celui-ci est équipé d'un générateur ARB 1410-150 (Physical Acoustics Corporation - Mistras Group) permettant ainsi via le même équipement l'enregistrement et la génération d'ondes US dans un large domaine fréquentiel (incluant celui de l'EA). Ce système a été employé pour déterminer les caractéristiques de la propagation des ondes guidées dans les matériaux à l'état non déformé, ainsi que pour l'ensemble des mesures effectuées au cours des essais de traction.

Les mesures des vitesses de phase des ondes de volume et de l'atténuation des ondes transversales ont été effectuées au contact à l'aide d'un oscilloscope (Tektronix TDS 360, 200 MHz, 1 Gs/s) connecté via une liaison GPIB à un ordinateur permettant l'enregistrement ainsi que le post-traitement des signaux.

Les mesures d'atténuation des ondes longitudinales ont été réalisées en immersion dans l'eau à l'aide d'un oscilloscope numérique (LeCroy WaveRunner HRO 64Zi : 400 MHz, 12 bits, 2 Gs/s) qui permet la visualisation et l'enregistrement des signaux avec le même équipement.

1.3.2.3. Signaux générés

Deux types de signaux ont été générés :

- Le signal de type 1 est un signal sinusoïdal comportant un seul cycle d'une fréquence choisie entre 100 kHz et 1,2 MHz, et d'amplitude 10 V. A l'aide de ce type de signal, nous avons déterminé l'atténuation des ondes guidées en fonction de la fréquence ainsi qu'en fonction du taux de cristallinité à la fréquence de 500 kHz (Figure.II.7.a). L'atténuation des ondes longitudinales a pu être évaluée avec un signal de type 1 de fréquence 300 kHz. La vitesse et l'atténuation des ondes transversales ont pu être déterminées avec ce type de signal de fréquence 1 MHz;
- Le signal de type 2 est un signal carré de durée 1 μ s, qui a été essentiellement utilisé pour suivre la déformation plastique et l'endommagement des matériaux dans la direction et perpendiculairement à l'axe de traction. L'amplitude de ce signal est de 10 V pour les ondes guidées (Figure.II.7.b) et de 1 V pour les ondes longitudinales. Il présente un contenu fréquentiel riche dans lequel la différence d'amplitude des composantes du domaine 50 kHz-1,2MHz est d'environ un facteur 10 (20 dB) (Figure.II.7.c).

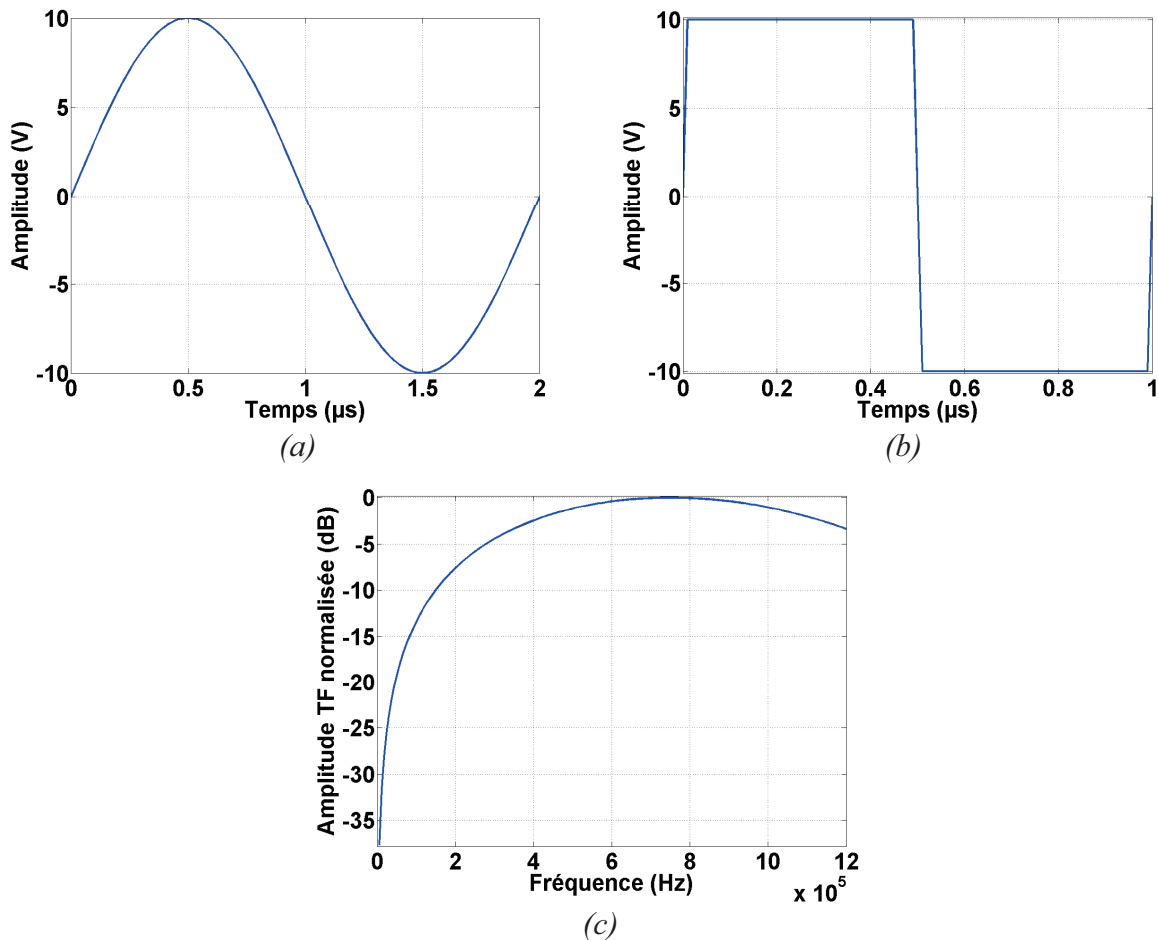


Figure.II.7. Signaux générés : (a) Signal de type 1 sinusoïdal de fréquence 500 kHz d'amplitude 10 V, (b) signal de type 2 carré d'amplitude 10 V, et (c) spectre du signal carré.

1.3.2.4. Capteurs et couplage

Au cours de ce travail, trois paires de capteurs ont été utilisés pour nos mesures US :

- **Pico** : Ces capteurs, développés par Physical Acoustics Corporation - Mistras Group, sont les mêmes que ceux utilisés pour la détection des signaux d'EA. Leur fréquence de résonance est située autour de 500 kHz. Ils ont été employés pour l'ensemble des mesures au contact, à l'exception des mesures de la vitesse et de l'atténuation des ondes de cisaillement. Le couplant utilisé avec ces capteurs est la graisse à vide (High vacuum grease, Dow Corning) identique à celle employée dans le montage d'EA;
- **Micro80** : Ces capteurs également développés par Physical Acoustics Corporation - Mistras Group, sont généralement utilisés pour l'instrumentation en EA. Leur fréquence de résonance est d'environ 300 kHz. Dans notre cas, ils ont servi à réaliser les mesures d'atténuation des ondes longitudinales en immersion dans l'eau car les capteurs Pico ne peuvent pas être plongés dans l'eau;
- **V152** : Ces capteurs sont des transducteurs US, développés par Panametrics, et conçus pour la génération et la détection d'ondes de cisaillement. Ces capteurs sont dits « large bande » et de fréquence centrale 1 MHz. Nous avons utilisé ces capteurs pour déterminer la vitesse et l'atténuation des ondes transversales. Nous avons employé un couplant visqueux permettant le passage des ondes de cisaillement pour ces mesures.

1.3.2.5. Dispositifs expérimentaux

Nous avons étudié la propagation des ondes US dans des polymères semi-cristallins à l'état non déformé ainsi qu'au cours d'essais de traction. Nos investigations nous ont mené à utiliser des ondes guidées et des ondes de volume nécessitant l'emploi de quatre dispositifs expérimentaux.

Le dispositif 1 permet l'enregistrement d'ondes guidées se propageant dans les éprouvettes de traction non déformées (Figure.II.8). Les capteurs émetteur et récepteur sont positionnés sur la même face du matériau à étudier. L'augmentation progressive de l'espacement entre les capteurs permet d'évaluer le comportement des paramètres US en fonction de la distance de propagation, et d'en déduire l'atténuation de ce type d'ondes dans le milieu. Ces mesures nécessitent le repositionnement du capteur récepteur à la distance souhaitée avant chaque acquisition. Ces manipulations impliquent donc que la qualité du couplage n'est pas la même ce qui peut influencer les mesures.

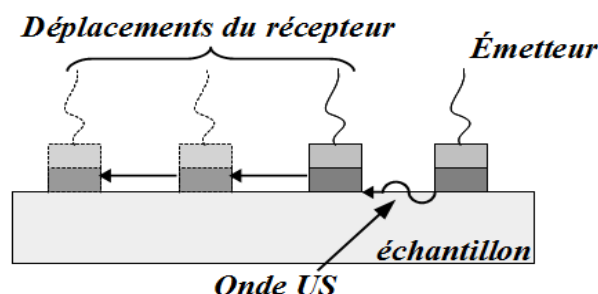


Figure.II.8. Dispositif expérimental 1. Détermination des paramètres des ondes guidées le long de la zone utile des éprouvettes non déformées.

Le dispositif 2 est associé à l'acquisition d'ondes longitudinales se propageant suivant l'épaisseur des éprouvettes de traction non déformées en immersion dans l'eau afin de garantir un bon couplage (Figure.II.9). La mesure consiste à comparer les signaux ayant traversé successivement l'eau uniquement puis dans le matériau à étudier.

Le dispositif 3 est dédié à l'enregistrement d'ondes guidées se propageant le long de la zone utile des éprouvettes au cours d'essais de traction (Figure.II.10.a). Les ondes transitent dans le matériau dans l'axe de traction permettant ainsi le suivi *in situ* de la déformation plastique et de l'endommagement suivant cette direction. Les capteurs sont posés sur la même face du matériau à étudier et la distance initiale entre les capteurs émetteur et récepteur est d'environ 12 mm.

Le dispositif 4 permet l'acquisition d'ondes longitudinales se propageant suivant l'épaisseur des éprouvettes au cours d'essais de traction (Figure.II.10.b). Les ondes traversent le matériau perpendiculairement à la direction de traction ce qui permet le suivi *in situ* de leur déformation plastique et de leur endommagement suivant cette direction. Les capteurs sont posés parallèlement et face-à-face sur chacune des faces du matériau à ausculter. La distance initiale entre les capteurs est donc égale à l'épaisseur du matériau.

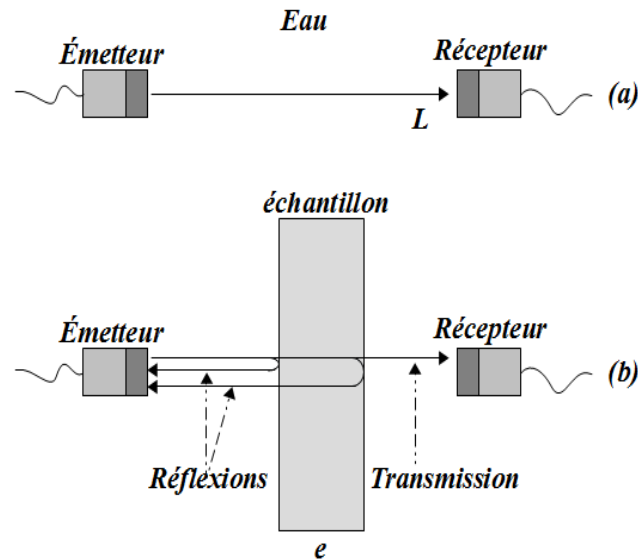


Figure.II.9. Dispositif expérimental 2. Schéma du montage de contrôle US en immersion dans l'eau en transmission simple (a) sans échantillon et (b) avec échantillon.

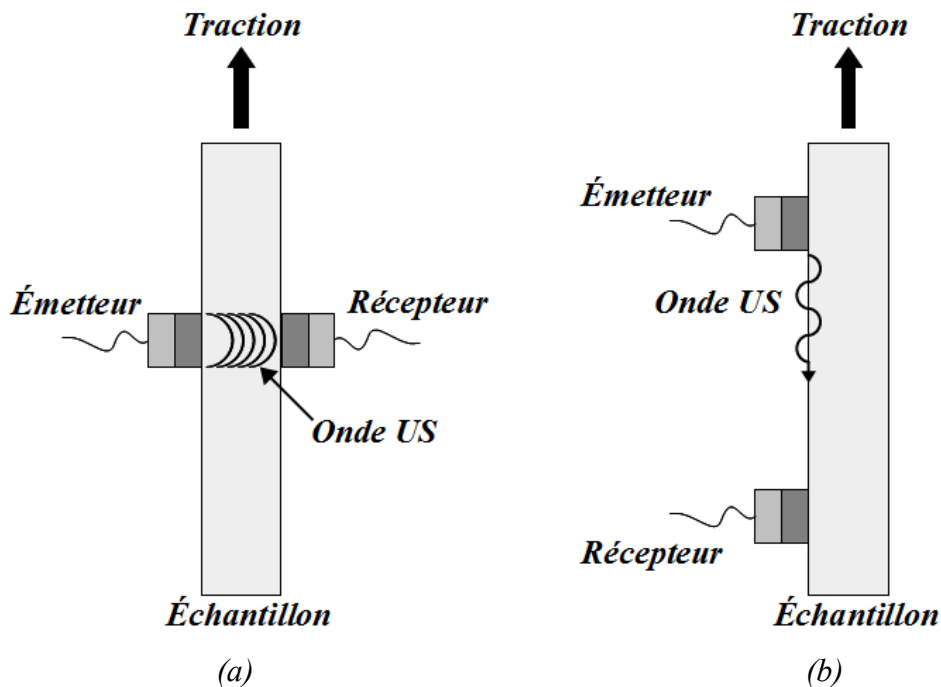


Figure.II.10. Dispositifs expérimentaux 3 et 4. Schéma des montages permettant le suivi in situ de la déformation plastique et de l'endommagement des matériaux (a) dans et (b) perpendiculairement à l'axe de traction.

1.3.2.6. Mesure de la vitesse de phase

Sur les matériaux non déformés, la mesure de la vitesse de phase des ondes de volume a été réalisée à l'aide de la méthode d'intercorrélation. Cette méthode est une des techniques les plus fiables pour calculer la vitesse de propagation des ondes US dans un milieu. Elle consiste à mesurer le décalage temporel entre un signal $x(t)$ se propageant dans un milieu de référence et un signal $y(t)$ ayant traversé le milieu de référence ainsi que l'échantillon à étudier, en comparant le degré de similitude de leur forme (Figure.II.11).

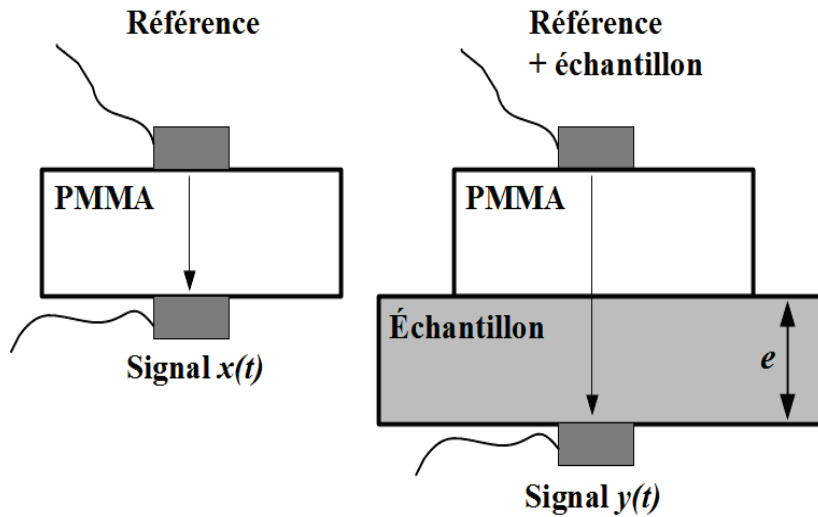


Figure.II.11. Schéma du montage expérimental permettant la mesure des vitesses des ondes de volume dans un échantillon.

La fonction d'intercorrélation est définie par la relation [DUB96] :

$$C_{x(t)y(t)} = \int x(u)y(u-t)du \quad (Eq.II. 7)$$

Le décalage temporel τ entre les deux signaux est obtenu au maximum de la fonction d'intercorrélation.

La Figure.II.12 montre le décalage temporel de deux signaux et de la fonction d'intercorrélation associée.

La vitesse de propagation dans l'échantillon d'épaisseur e correspond à une vitesse proche de la fréquence centrale du signal [HUL85] et peut être calculée par la relation :

$$V = \frac{e}{\tau} \quad (Eq.II. 8)$$

Les calculs de la fonction d'intercorrélation et de la vitesse sont indépendants du milieu de référence choisi.

En revanche, l'échantillon à étudier ne doit pas être trop dispersif afin d'éviter les erreurs de calcul de la vitesse dû à la déformation du signal lors de sa propagation dans le matériau. En outre, cette méthode ne permet pas d'avoir accès à la dispersion de vitesse et d'atténuation.

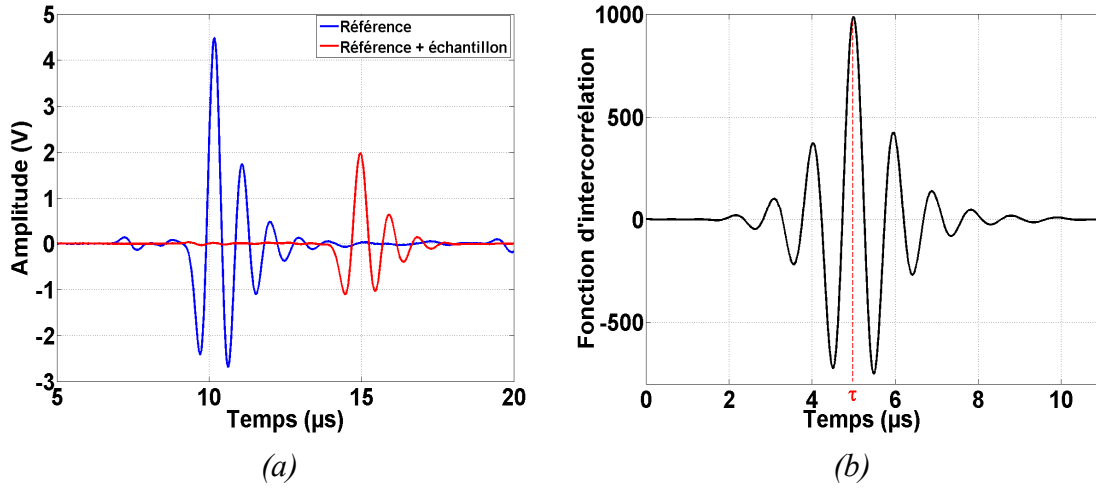


Figure.II.12. (a) Signaux temporels enregistrés à travers un matériau de référence (PMMA) et l'échantillon à étudier et (b) la fonction d'intercorrélation associée pour la détermination du décalage temporel.

Au cours des essais de traction, la vitesse des ondes longitudinales a été mesurée suivant une autre méthode. En effet, le temps de vol t_{vol} des ondes dans le matériau n'est pas directement mesurable car il n'y a pas de synchronisation entre le générateur ARB de formes d'ondes et le système d'acquisition PCI-2.

En revanche, nous connaissons avec une grande précision l'instant auquel le signal a été enregistré après avoir traversé le milieu.

Par conséquent, en connaissant l'épaisseur e_0 et la vitesse des ondes longitudinales V_0 , ainsi que le temps t_1 auquel le premier signal a été enregistré après avoir transité dans le matériau sain, nous pouvons déterminer l'instant t_0 auquel le signal a été généré avant de lancer l'essai de traction (Figure.II.13.a).

$$t_1 = t_0 + t_{vol} = t_0 + \frac{e_0}{V_0} \quad (Eq.II. 9)$$

$$t_0 = t_1 - \frac{e_0}{V_0} \quad (Eq.II. 10)$$

De même, à partir des temps t_1 et t'_1 correspondant à l'enregistrement de deux signaux successifs, nous pouvons calculer l'intervalle de temps exact δt_0 entre les signaux générés :

$$t'_1 = t_0 + \delta t_0 + t_{vol} = t_1 - \frac{e_0}{V_0} + \delta t_0 + \frac{e_0}{V_0} = t_1 + \delta t_0 \quad (Eq.II. 11)$$

$$\delta t_0 = t'_1 - t_1 \quad (Eq.II. 12)$$

Par conséquent, en connaissant le temps d'enregistrement t_n du $n^{\text{ème}}$ signal acquis lors d'un essai et l'épaisseur du matériau e_n correspondant, nous pouvons suivre la vitesse des ondes longitudinales V_n au cours de la déformation plastique et de l'endommagement du matériau (Figure.II.13.b) :

$$t_n = t_0 + (n-1)\delta t_0 + t_{\text{vol}} = t_0 + (n-1)\delta t_0 + \frac{e_n}{V_n} \quad (\text{Eq.II. 13})$$

$$V_n = \frac{e_n}{t_n - t_0 - (n-1)\delta t_0} \quad (\text{Eq.II. 14})$$

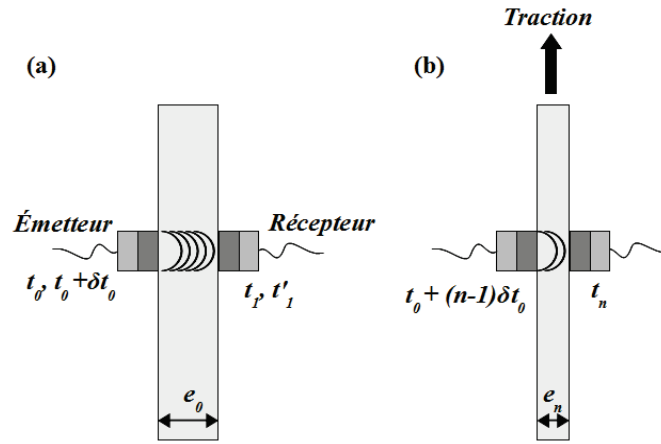


Figure.II.13. Détermination de (a) l'instant auquel le signal a été généré et l'intervalle de temps entre 2 signaux générés avant de lancer l'essai de traction et (b) la vitesse des ondes longitudinales au cours d'un essai de traction.

1.3.2.7. Mesure de l'atténuation

Lorsqu'une onde se propage dans un milieu, son absorption se caractérise par une décroissance exponentielle de son amplitude maximale A_{max} . Le coefficient d'absorption du milieu est calculé à partir de l'expression $A_{\text{max}}(x) = A_0 e^{-\alpha x}$, où x est la distance parcourue par l'onde. Cependant, l'amplitude maximale ne rend pas compte de l'ensemble du signal, et il est préférable de considérer son énergie car celle-ci représente l'intégrale du carré de l'amplitude sur la durée totale du signal. L'énergie du signal est donnée par la relation :

$$E(x) = \frac{K}{\tau} \int_0^{\tau} A^2(x, t) dt \quad (\text{Eq.II. 15})$$

Où K est une constante combinant les impédances électrique et acoustique du capteur.

Lorsque la propagation des ondes a lieu dans un milieu non dispersif, les variables de temps et d'espace peuvent être séparées, et l'amplitude de l'onde s'écrit alors sous la forme :

$$A(x, t) = A_0 e^{-\alpha x} g(t) \quad (\text{Eq.II. 16})$$

Où la fonction $g(t)$ représente la forme d'onde dépendante du temps.

Ainsi, nous injectons cette expression dans $E(x)$:

$$E(x) = \frac{K}{\tau} \int_0^{\tau} A_0^2 e^{-2\alpha t} g^2(t) dt = \frac{K}{\tau} A_0^2 e^{-2\alpha x} \int_0^{\tau} g^2(t) dt \quad (Eq.II. 17)$$

$$\text{Avec } E_0 = \frac{KA_0^2}{\tau} \int_0^{\tau} g^2(t) dt$$

Par conséquent, l'énergie $E(x)$ présente également une décroissance exponentielle de la forme :

$$E(x) = E_0 e^{-\beta x} \quad (Eq.II. 18)$$

Où le coefficient d'atténuation β est :

$$\beta = 2\alpha \quad (Eq.II. 19)$$

Ces coefficients d'atténuation sont exprimés en Neper.m⁻¹ ou plus simplement en m⁻¹.

Afin de rendre plus explicite le coefficient α , nous l'avons converti en décibel par mètre (dB/m) par la relation :

$$\alpha_1 = 20 \log_{10}(e^{\alpha}) \quad (Eq.II. 20)$$

Par conséquent, par la suite nous avons essentiellement utilisé l'énergie des signaux et l'Eq.II. 18 afin de déterminer l'atténuation des ondes dans les matériaux.

➤ Ondes guidées dans les matériaux sains

Pour les ondes guidées se propageant dans les matériaux non déformés, l'atténuation α a été déterminée à partir des mesures expérimentales de l'énergie des signaux US en faisant varier la distance x entre le capteur émetteur et récepteur, suivant le dispositif expérimental 1 de la Figure.II.8. La valeur de l'énergie (en aJ) des signaux est directement fournie par le système d'acquisition PCI-2. Ces valeurs sont ensuite tracées en fonction de la distance correspondante puis nous effectuons un ajustement de celles-ci par la loi $E = E_0 e^{-\beta x}$ à l'aide de la boîte à outil (toolbox) *cftool* de MatLab. Ainsi, nous obtenons le coefficient d'atténuation β de l'énergie qui est ensuite divisé par 2 afin de déterminer le coefficient d'atténuation α du matériau.

La Figure.II.14 montre un exemple de la détermination du coefficient α , d'ondes guidées qui se sont propagés à la surface d'un PE, après un ajustement par la loi exponentiellement décroissante utilisée.

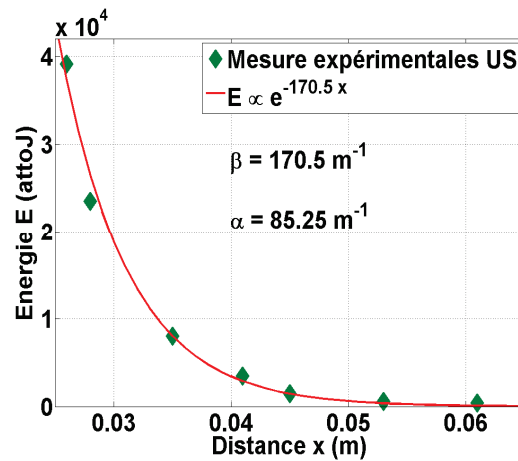


Figure.II.14. Exemple de la détermination de l'atténuation des ondes guidées à la surface d'un PE sain.

➤ Ondes guidées au cours d'essais de traction

Pour le suivi de la déformation plastique et de l'endommagement au cours d'essais de traction des matériaux étudiés à l'aide d'ondes guidées, nous avons généré des signaux tous les 25 ms.

L'expression de l'énergie E_n d'une onde guidée, ayant parcouru une distance d_n entre l'émetteur et le récepteur au cours d'un essai de traction, s'écrit $E_n = E_0 e^{-\beta d_n}$. Celle-ci est comparée à l'énergie E_l du signal ayant parcouru la distance d_l d'environ 12 mm séparant les capteurs au début de l'essai et qui s'écrit $E_l = E_0 e^{-\beta d_l}$. L'atténuation peut ainsi être calculée en effectuant le rapport de ces deux énergies, puis en isolant le coefficient α :

$$\alpha = \frac{\ln \frac{E_l}{E_n}}{2(d_n - d_l)} \quad (\text{Eq.II. 21})$$

L'inconvénient de cette méthode de calcul est qu'en tout début d'essai la différence $d_n - d_l$ est très faible, ce qui a pour conséquence de faire diverger le coefficient α et ainsi de fausser la valeur de l'atténuation dans le domaine élastique.

➤ Ondes longitudinales dans les matériaux sains

L'atténuation des ondes longitudinales a été déterminée à l'aide de mesures réalisées en immersion dans l'eau (Figure.II.9). Pour cela dans un premier temps, nous avons enregistré un signal US de référence qui s'est propagé uniquement dans l'eau, noté $s_{eau}(t)$. Puis dans un second temps, nous avons inséré le matériau à étudier sur le trajet du faisceau US entre les deux capteurs, et le signal enregistré est noté $s_{matériau}(t)$.

Ce dernier signal est donc modifié par (i) la traversée du matériau d'épaisseur e et par (ii) la réflexion d'une partie de l'énergie du signal incident sur les deux faces du matériau à cause de la différence d'impédance acoustique entre le matériau et l'eau.

Le coefficient de transmission global T d'un signal en incidence normale à travers le matériau est :

$$T = \frac{4\rho_{\text{eau}}V_{\text{eau}}\rho V}{(\rho_{\text{eau}}V_{\text{eau}} + \rho V)^2} \quad (\text{Eq.II. 22})$$

Avec V et V_{eau} la vitesse des ondes longitudinales respectivement dans le matériau et dans l'eau, et ρ et ρ_{eau} la masse volumique du matériau et de l'eau.

Le rapport des transformées de Fourier $S_{\text{eau}}(f)$ et $S_{\text{matériau}}(f)$ respectivement de $s_{\text{eau}}(t)$ et $s_{\text{matériau}}(t)$ s'écrit :

$$\frac{S_{\text{eau}}(f)}{S_{\text{matériau}}(f)} = T(f) \exp[-(\alpha_{\text{matériau}}(f) - \alpha_{\text{eau}}(f))e] \quad (\text{Eq.II. 23})$$

Pour chaque valeur de la fréquence f , $|S_{\text{eau}}(f)|$ et $|S_{\text{matériau}}(f)|$ représentent l'amplitude des signaux $s_{\text{eau}}(t)$ et $s_{\text{matériau}}(t)$. Or comme nous l'avons déjà dit, nous avons choisi de travailler avec l'énergie.

Ainsi, le rapport de l'énergie des signaux qui se sont propagés dans l'eau uniquement E_{eau} et dans le matériau $E_{\text{matériau}}$ s'écrit :

$$\frac{E_{\text{eau}}}{E_{\text{matériau}}} = T \exp[-(\beta_{\text{matériau}} - \beta_{\text{eau}})e] \quad (\text{Eq.II. 24})$$

L'atténuation dans l'eau peut être négligée devant celle du matériau.

$$\alpha_{\text{matériau}} = \frac{1}{2e} [\ln T - \ln \frac{E_{\text{matériau}}}{E_{\text{eau}}}] \quad (\text{Eq.II. 25})$$

➤ Ondes longitudinales au cours d'essais de traction

Le suivi de l'atténuation des ondes longitudinales ne peut être réalisé efficacement tout au long d'un essai de traction à l'aide de la relation Eq.II. 21 car la variation d'épaisseur du matériau, très faible dans le domaine élastique, engendre une divergence du coefficient α .

Par conséquent, nous avons choisi de calculer l'atténuation des ondes longitudinales en cours d'essais à partir d'une relation reliant l'atténuation à la vitesse. Bien que, la vitesse et l'atténuation soient calculées indépendamment l'une de l'autre, elles sont liées par des relations de causalité, appelées relations de Kramers-Kronig [ODN81]. Celles-ci permettent de déterminer l'atténuation à partir de la valeur expérimentale de la vitesse de phase des ondes, et vice versa. Cependant, ces relations supposent que la vitesse et l'atténuation n'évoluent pas trop vite avec la fréquence.

Dans notre cas, nous avons déterminé l'atténuation à partir de la vitesse des ondes longitudinales.

$$\alpha(f) = \left(\frac{\pi f}{V} \right)^2 \frac{dV(f)}{df} \quad (Eq.II. 26)$$

Cependant, comme nous l'avons vu précédemment, la vitesse des ondes longitudinales au cours des essais de traction est déterminée à partir des temps d'enregistrement des signaux. Ainsi, la dispersion de vitesse dV/df n'est pas connue au cours d'un essai. Néanmoins, la pente k_0 de la courbe de la vitesse en fonction de la fréquence peut être déterminée autour de la fréquence moyenne f_m du signal se propageant dans le matériau sain avant le début de l'essai :

$$k_0 = \alpha_0 \left(\frac{V_0}{\pi f_m} \right)^2 \quad (Eq.II. 27)$$

Avec $k_0 = dV/df$, V_0 et α_0 sont respectivement la vitesse et l'atténuation des ondes longitudinales dans le matériau sain.

Par conséquent, en supposant que la dispersion de vitesse n'évolue pas au cours des essais, l'atténuation α_n peut être calculée à partir de la relation :

$$\alpha_n = k_0 \left(\frac{\pi f_m}{V_n} \right)^2 \quad (Eq.II. 28)$$

Avec V_n la vitesse des ondes longitudinales déterminée à partir de la relation (Eq.II. 14).

2. MATERIAUX

2.1. CHOIX DES MATERIAUX

Notre choix de matériaux s'est porté sur trois polymères semi-cristallins ayant déjà fait l'objet de nombreuses études sur leurs propriétés mécaniques et sur leurs micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement : le **Polyéthylène** (PE), le **Polypropylène** (PP) et le **Polyfluorure de vinyle** (PVDF).

Comme nous l'avons montré dans le chapitre bibliographique, ces matériaux présentent une microstructure complexe qui est organisée en plusieurs échelles d'observation. Deux phases (amorphe et cristalline) coexistent au sein de ces matériaux qui peuvent donc être vus comme des matériaux composites à l'échelle nanométrique. Ces phases s'arrangent sous forme de lamelles dont l'épaisseur peut être modifiée par des traitements thermiques. De plus, ces matériaux présentent généralement un comportement ductile lorsqu'ils sont sollicités en traction à température ambiante car celle-ci est située au-dessus de leur température de transition vitreuse.

2.1.1. Polyéthylène

Les PE étudiés proviennent de la société Total et ont fait l'objet de nombreuses études au cours des thèses de Julien Cazenave [CAZ05] et de Séverine Humbert [HUM09]. L'ensemble des PE à notre disposition ont l'avantage d'avoir des paramètres moléculaires variés.

Les cinq PE qui ont été choisis pour effectuer nos investigations sont connus sous les appellations : Cr28, Cr25, Cr24, Cr21 et Cr13. Afin de simplifier les notations, ces matériaux seront nommés par la suite respectivement : PE A, PE B, PE C, PE D et PE D'. Leur masse moléculaire moyenne M_w est comprise entre 129 et 231 kDa [HUM10a, XIO13].

Ces PE diffèrent par leur topologie moléculaire qui est dite « branchée » dans le cas des PE A et PE B, « quasi-linéaire » pour les PE C et PE D et « linéaire » pour le PE D'.

Tous ces PE se présentent sous la forme de petits granulés blancs.

2.1.2. Polypropylène

En plus de ces cinq PE, nous avons aussi choisi d'étudier un homopolymère PP provenant de la société Boréal et connu sous l'appellation HG455FB. Sa masse moléculaire moyenne est de 360 kDa et il possède la particularité d'avoir un indice de fluidité très élevé ($MFI = 27$), c'est pourquoi il est très facile à mettre en œuvre. De plus, son indice de polydispersité est de 2,4 [BER13]. Contrairement aux PE, nous ne connaissons pas sa topologie moléculaire.

Comme pour les PE, ce matériau se présente sous la forme de petits granulés blancs légèrement translucides.

2.1.3. Polyfluorure de vinylidène

En outre des PE et du PP, et afin d'obtenir un maximum d'informations sur l'effet de la chimie des matériaux sur les données récoltées en EA et en US, nous avons également choisi d'étudier un PVDF fourni par la société Arkéma. Son taux de cristallinité est de 47 %.

Il se présente sous la forme de petites plaques carrées de dimensions 10 x 10 cm de côtés et d'épaisseur 3 mm.

2.2. ÉLABORATION: TRAITEMENTS THERMIQUES

Afin de faire varier la microstructure des PE et du PP, nous avons utilisé deux types de traitements thermiques : la trempe (*quench* en anglais) et le traitement « isotherme ». Ces traitements thermiques, nous ont permis de faire varier les taux de cristallinité. De plus, ces traitements peuvent modifier la taille des lamelles cristallines (et amorphes), la longue période mais aussi le couplage physique entre les deux phases.

Par la suite afin de différencier les deux types de traitements pour les matériaux, nous avons utilisé la notation suivante : Matériaux_X avec Matériau = {PE ou PP}, et X = {pour la trempe *que* ou pour le traitement « isotherme » *iso*}.

2.2.1. Trempe

Initialement, les PE et le PP se présentent sous forme de granulés. Ils ont été mis en forme à l'aide d'un dispositif composé de deux fines plaques et d'un cadre en aluminium dans lequel les granulés ont été introduits. L'ensemble a été placé dans une presse à 170°C pour les PE et 190°C pour le PP afin qu'ils y soient fondus. Au bout d'environ 30 min, l'ensemble est plongé dans l'eau afin de faire chuter rapidement la température du matériau, sa microstructure se trouve ainsi figée et le taux de cristallinité obtenu est faible. Cette opération nous permet d'obtenir des matériaux sous forme de plaques rectangulaires de 15 x 10 cm de côtés et d'environ 6 mm d'épaisseur.

La Figure.II.15 schématise le cycle thermique des trempes effectuées.

La température pic de fusion des PE trempés augmente avec le taux de cristallinité, et est comprise entre 126,7°C et 135,6°C.

Après ce traitement thermique, le PE A présente un taux de cristallinité de 48 % ce qui en fait le moins cristallin parmi ceux étudiés. Le taux de cristallinité du PE D et PE D' est de 68 %, alors que celui du PE B (54 %) et du PE C (63 %) est intermédiaire (Tableau.II.4).

A l'état trempé, la température pic de fusion du PP est de 167,5°C et son taux de cristallinité est de 53 %.

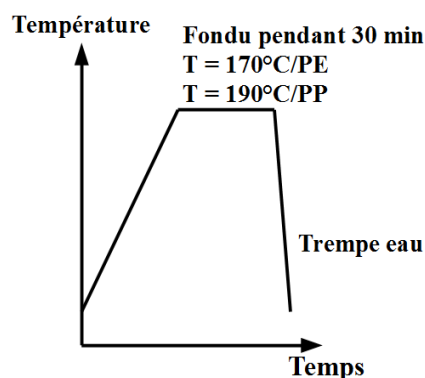


Figure.II.15. Evolution de la température du matériau au cours d'une trempe.

2.2.2. Traitement « isotherme »

Les traitements « isothermes » ont été effectués uniquement sur les PE. Ces matériaux ont été fondus avant d'être refroidis jusqu'à une température choisie. Ils ont été ensuite maintenus à cette température pendant environ 10 h puis refroidis à l'air. La Figure.II.16 représente le cycle thermique des traitements « isothermes » réalisés. L'isotherme s'effectue à une température voisine de la température du pic de cristallisation afin d'être située dans le domaine préférentiel de croissance des lamelles cristallines. Par conséquent, ce traitement permet d'obtenir des lamelles cristallines épaisses et un taux de cristallinité plus élevé que lors d'une trempe.

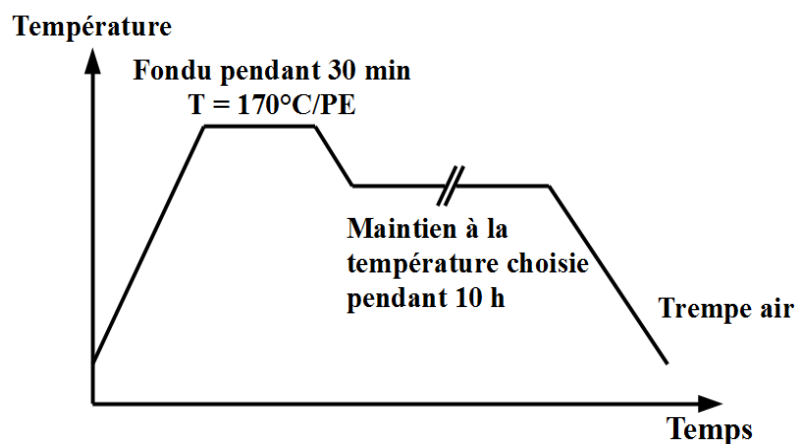


Figure.II.16. Evolution de la température du matériau au cours d'un traitement « isotherme ».

Les températures des traitements « isothermes » sont respectivement de 114°C , 113°C , 124°C , 123°C et 127°C pour le PE A, PE B, PE C, PE D et PE D'.

La Figure.II.17 montre les courbes DSC obtenues sur les PE C_{que} et PE C_{iso} . Nous pouvons voir que le traitement « isotherme » a eu pour effet une augmentation significative de la température de fusion T_f , ce qui signifie que le taux de cristallinité des matériaux est plus élevé après le traitement thermique « isotherme ». Le second petit pic de fusion est associé à la fusion de lamelles cristallines de faibles épaisseurs formées lors de la descente en température entre le fondu et l'isotherme de 10 h.

Après le traitement « isotherme », le taux de cristallinité des PE a augmenté, il vaut respectivement 51 %, 63 %, 74 %, 79 % et 79 % pour le PE A_{iso} , PE B_{iso} , PE C_{iso} , PE D_{iso} et PE D'_{iso} .

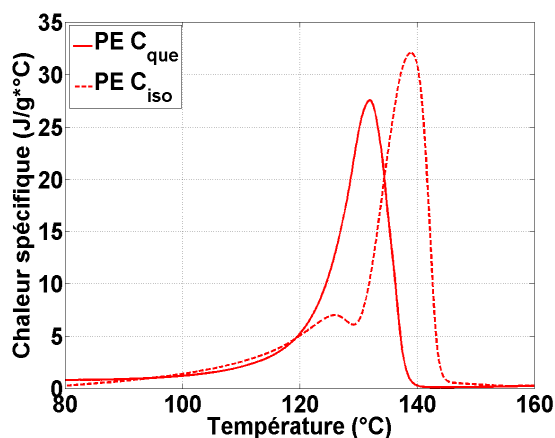


Figure.II.17. Courbes DSC obtenues pour les PE C_{que} et PE C_{iso} .

Le PVDF étudié n'a subi aucun traitement thermique, et nos investigations ont été menées directement à partir des plaques reçues. Sa température pic de fusion vaut $171,1^{\circ}\text{C}$ et son taux de cristallinité est de 47 %.

Le Tableau.II.3 indique la température du pic de fusion et l'enthalpie de fusion des PE, PP et PVDF. Les températures des traitements « isothermes » pendant environ 10 h pour les PE sont également présentées.

Matériaux	T (°C) pic de fusion T_f	Enthalpie de fusion ΔH_f (J/g)	T (°C) des traitements « isothermes »
PE A	126,7	139,9	114
PE B	129,7	155,7	113
PE C	132,7	181,8	124
PE D	134,8	195,2	123
PE D'	135,6	195,9	127
PP	167,5	86,7	-
PVDF	171,1	49,1	-

Tableau.II.3. Températures du pic de fusion et enthalpies de fusion des matériaux à l'état trempé, et températures des traitements « isothermes ».

Quelques paramètres moléculaires et microstructuraux des matériaux étudiés sont présentées dans le Tableau.II.4. Les symboles et le code couleur utilisés pour différencier les matériaux dans les graphiques par la suite sont aussi indiqués.

Matériaux	Appellation	Type	Schéma	χ_c (%)	Symbole
PE A trempé	PE A _{que}	« branché »		48	
PE A isotherme	PE A _{iso}			51	
PE B trempé	PE B _{que}	« branché »		54	
PE B isotherme	PE B _{iso}			64	
PE C trempé	PE C _{que}	« quasi-linéaire »		63	
PE C isotherme	PE C _{iso}			74	
PE D trempé	PE D _{que}	« quasi-linéaire »		68	
PE D isotherme	PE D _{iso}			79	
PE D' trempé	PE D' _{que}	« linéaire »		68	
PE D' isotherme	PE D' _{iso}			79	
PP trempé	PP _{que}	?	?	53	
PVDF	PVDF	?	?	47	

Tableau.II.4. Quelques paramètres microstructuraux dont le taux de cristallinité des PE et du PP traités thermiquement ainsi que du PVDF étudié.

2.3. MECANISMES DE FORMATION DE LA CAVITATION

À partir des techniques de diffusion X (SAXS) et de microscopie électronique à balayage (MEB), des nombreux auteurs ont montré qu'à température ambiante des micro-cavités peuvent être formées lors de la déformation plastique de PE [ADD06, PAW07], de PP [PAW08, PAW13] et de PVDF [CAS00].

Humbert *et al.* [HUM10a, HUM10b] puis Xiong *et al.* [XIO13] ont montré qu'après avoir subis les différents traitements thermiques, plusieurs mécanismes de cavitation apparaissent au sein des PE lors d'essais de traction.

En fonction du mécanisme, ces auteurs distinguaient trois groupes de PE :

- Les PE A_{que} et PE B_{que} se déforment en l'absence de cavitation;
- Les PE A_{iso}, PE B_{iso}, PE C_{que}, PE D_{que} et PE D'_{que} se déforment en présence de micro-cavités. La cavitation apparaît après le seuil de plasticité, ainsi la formation des micro-cavités est localisée dans la striction de l'éprouvette de traction;
- Les PE C_{iso}, PE D_{iso} et PE D'_{iso} se déforment avec formation de micro-vides mais ces derniers apparaissent de manière homogène sur la zone centrale de l'éprouvette de traction et se forment avant le seuil de plasticité.

Pour les PE étudiés, la formation de la cavitation s'accompagne d'un blanchissement des éprouvettes au cours des essais. Dans le cas des PE qui ne cavitent pas, l'éprouvette devient transparente au niveau de la striction au cours des essais.

Aucune analyse par SAXS ou MEB n'a été réalisée sur le PP et le PVDF, ainsi nous ne savons pas si ceux-ci se déforment en présence du mécanisme de cavitation. Cependant, nous avons observé le blanchissement des éprouvettes au niveau de la striction ce qui pourrait être le signe de la formation de micro-cavités au sein de ces matériaux.

3. CONCLUSION

Comme nous l'avons vu dans ce chapitre, la déformation plastique et l'endommagement de PE, PP et PVDF seront caractérisés par les techniques d'EA et de contrôle US. Les PE ont subi deux traitements différents (trempe et traitement « isotherme ») afin de modifier leur microstructure, plus particulièrement dans le but de faire croître l'épaisseur des lamelles cristallines, ce qui permet de faire varier leur taux de cristallinité. Nous avons ainsi à notre disposition 10 PE de taux de cristallinité allant de 48 % à 79 %. De plus, pour les PE, différents mécanismes de formation de la cavitation apparaissent au cours des essais de traction. Afin d'observer l'effet de la chimie sur les mesures d'EA et US, nous avons aussi étudié un PP et un PVDF dont le taux de cristallinité est respectivement de 53 % et 47 %.

La technique de contrôle US, nous permettra d'acquérir une meilleure compréhension de la propagation des ondes US dans les matériaux étudiés. Nos investigations seront menées d'une part sur les matériaux sains, et d'autre part lors d'essais de traction permettant ainsi de

déterminer l'influence des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement sur la propagation des ondes US. Pour cela, nous générerons des signaux dont le contenu fréquentiel sera situé dans le domaine classique de l'EA, c'est-à-dire entre 20 kHz et 1,2 MHz. Nous entreprendrons une étude de plusieurs facteurs sur la propagation des ondes tels que la distance de propagation, la géométrie des éprouvettes, la fréquence de la source ou encore le taux de cristallinité. Le suivi de la déformation plastique et de l'endommagement des matériaux sera effectué suivant des mesures *in situ* et *ex situ*. Pour nos investigations, nous utiliserons les ondes guidées se propageant le long de la zone utile des éprouvettes dans l'axe de traction, et les ondes de volume transitant suivant l'épaisseur des éprouvettes perpendiculairement à l'axe de traction. Nous tenterons ainsi de décorréler les effets liés aux différents mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissant au sein des matériaux de l'évolution de la géométrie des éprouvettes qui est due notamment à la formation de la striction au cours des essais.

Nous utiliserons la technique d'émission acoustique pour obtenir de nouvelles informations sur l'amorçage des mécanismes de plasticité et de l'endommagement des matériaux étudiés. Cette étude sera menée avec les mêmes capteurs et système d'acquisition que ceux utilisés pour les mesures US au cours des essais de traction. Nous vérifierons en premier lieu que les signaux d'EA collectés proviennent bien des matériaux. Nous ferons varier la vitesse de déformation des matériaux afin de mettre en évidence son influence sur l'activité acoustique. Nous montrerons le comportement de l'activité acoustique au cours des essais. L'influence du taux de cristallinité sera également mise en évidence ce qui nous conduira à tenter d'établir l'origine des signaux détectés. Enfin, nous analyserons l'initiation de l'activité acoustique, en particulier avant le seuil de plasticité, afin de caractériser les prémices des mécanismes de plasticité et d'endommagement lors des essais. Nous déterminerons ainsi un critère de plasticité à partir des données récoltées par la technique d'EA.

CHAPITRE III

SUIVI DE LA DÉFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT DE POLYMERES SEMI-CRISTALLINS PAR LA TECHNIQUE DE CONTRÔLE ULTRASONORE

1. INTRODUCTION.....	79
2. COMPORTEMENT DES ONDES US SOUS SOLlicitATIONS VISCO-ELASTIQUES	80
2.1. RAPPEL DES DIFFERENTS TYPES D'ONDES.....	80
2.2. MODIFICATIONS DU SIGNAL : DU GENERATEUR AU RECEPTEUR	81
2.3. ONDES GUIDEES	83
2.3.1. Effets de la distance de propagation sur les paramètres US.....	83
2.3.2. Facteurs influençant l'atténuation	85
2.4. ONDES DE VOLUME.....	90
2.4.1. Atténuation.....	90
2.4.2. Vitesse.....	91
2.4.3. Constantes élastiques.....	92
3. SUIVI DE LA DÉFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT DE PE PAR ONDES US LORS D'ESSAIS DE TRACTION.....	94
3.1. RAPPEL DES DIFFÉRENTS MÉCANISMES DE PLASTICITÉ ET D'ENDOMMAGEMENT.....	94
3.2. EVOLUTION DES PARAMETRES US LORS D'UN ESSAI DE TRACTION SUR UN DES POLYMERES ETUDIES, LE PE D _{QUE}	95
3.2.1. Suivi des paramètres des ondes guidées.....	95
3.2.2. Suivi des paramètres des ondes longitudinales	98
3.2.2.1. Essai de traction continu	98
3.2.2.2. Essai de traction arrêté	100
3.3. INFLUENCE GEOMETRIQUE DE LA STRICTION ET DES MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT SUR LA PROPAGATION DES ONDES US	103
3.3.1. Ondes guidées.....	103
3.3.1.1. Influence géométrique de la striction.....	103
3.3.1.2. Influence de l'orientation des chaînes	104
3.3.2. Ondes longitudinales	105
3.3.2.1. Influence du taux de cristallinité.....	105
3.3.2.2. Influence de la cavitation	107
3.3.2.3. Influence de l'orientation des chaînes.....	108
4. COMPORTEMENT DES ONDES US DANS D'AUTRES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS.....	109
4.1. POLYPROPYLENE.....	110
4.2. POLYFLUORURE DE VINYLIDENE	111
5. CONCLUSION.....	113

1. INTRODUCTION

La technique de contrôle par ondes ultrasonores (US) est une méthode classiquement utilisée pour caractériser les propriétés élastiques et rendre compte de l'endommagement et de la déformation plastique de divers matériaux. Les paramètres des ondes US (énergie, contenu fréquentiel, vitesse, atténuation, ...) sont fortement dépendants des propriétés du milieu de propagation et leur évolution peut être attribuée à des modifications des caractéristiques du matériau (densité, modules élastiques, état du réseau cristallin, ...). Par conséquent, les variations des paramètres US peuvent être reliées à l'apparition de mécanismes de plasticité et d'endommagement au sein du matériau. Cependant, la forte atténuation des ondes US dans les polymères semi-cristallins, en particulier au-dessus de leur température de transition vitreuse, rend complexe l'utilisation de cette technique d'analyse pour l'étude de ces matériaux lors d'essais de traction. De plus, de nombreux mécanismes apparaissent simultanément lors de la transformation de la structure sphérolitique initiale en la structure fibrillaire. Au cours de cette transformation, le milieu homogène isotrope du matériau sain tend progressivement vers un milieu hétérogène anisotrope au cours de la déformation plastique. Les propriétés du milieu sont ainsi fortement modifiées affectant la propagation des ondes US dans le matériau.

L'étude de la déformation plastique et de l'endommagement de polymères semi-cristallins montre qu'une modification importante des paramètres US est observée dès le seuil de plasticité lors d'un essai de traction. Cependant, l'influence des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement ainsi que les effets géométriques dus à la formation d'une striction sur la propagation des ondes n'ont pas encore été clairement établie. De plus, peu de ces études ont été effectuées dans le domaine fréquentiel de l'émission acoustique (EA). Enfin, la caractérisation de la déformation plastique et l'endommagement de ces matériaux n'a pas encore été réalisée à l'aide de différents types d'ondes dans une seule et même étude.

Dans une première partie, nous chercherons à acquérir une meilleure compréhension de la propagation des ondes US dans les polymères semi-cristallins sains. Pour cela, une étude paramétrique sera effectuée à l'aide d'ondes guidées et d'ondes de volume dans des PE possédant des paramètres microstructuraux variés. Pour les ondes guidées, nous analyserons l'influence de la géométrie des éprouvettes, du taux de cristallinité des matériaux ainsi que de la fréquence des signaux sur les paramètres US. L'évolution de la vitesse et l'atténuation des ondes longitudinales et transversales en fonction du taux de cristallinité sera également analysée.

Dans une deuxième partie, nous montrerons l'influence des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement sur la propagation des ondes US lors d'essais de traction. Dans un premier temps, nous observerons l'évolution des paramètres des ondes guidées et des ondes longitudinales au cours d'essais de traction sur l'un des PE étudiés, le PE D_{que}. Puis dans un second temps, nous analyserons ces évolutions pour l'ensemble des PE, nous amenant à étudier l'influence du taux de cristallinité et des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement sur la propagation des ondes au cours d'essais de traction.

Enfin, la dernière partie sera consacrée à l'étude de la propagation des US dans un PP et un PVDF à l'état non déformé et au cours d'essais de traction afin de vérifier si les comportements constatés sur les PE sont également observés sur d'autres polymères semi-cristallins.

Enfin une conclusion achèvera ce chapitre.

2. COMPORTEMENT DES ONDES US SOUS SOLlicitATIONS VISCOELASTIQUES

La technique de contrôle US est ici mise en œuvre en complément de la technique d'EA. Cette dernière sera utilisée pour la détection de signaux provenant des mécanismes de plasticité et d'endommagement des PE lors d'essais de traction (Chapitre IV). Cependant, la technique d'EA ne fournit aucuns renseignements sur l'influence de l'état de la microstructure du matériau sur la propagation des ondes. Ainsi dans cette partie, nous cherchons à acquérir au préalable une meilleure compréhension de la propagation des ondes US dans les PE. Le contenu fréquentiel des ondes US, qui nous intéressent, est compris dans le domaine classique de l'EA, c'est-à-dire entre 20 kHz et 1,2 MHz.

A ces fréquences, la longueur d'onde est typiquement comprise entre 1,7 mm et 10 cm ce qui est bien supérieur aux dimensions des empilements lamellaires voire même des sphérolites du matériau. Par conséquent, les ondes US se propagent dans les PE sains sans rencontrer d'obstacles et « voient » un milieu homogène et isotrope. Par conséquent, l'atténuation par le phénomène de diffusion des ondes est négligeable devant l'absorption.

Une onde est dite « dispersive » lorsque son atténuation et/ou sa vitesse dépendent de la fréquence. Nous précisons à chaque fois si la dispersion concerne l'atténuation et/ou la vitesse des ondes.

2.1. RAPPEL DES DIFFERENTS TYPES D'ONDES

Selon les caractéristiques de la source, la fréquence des ondes, le positionnement des capteurs ou encore la géométrie de la structure à étudier, la nature des ondes se propageant dans le matériau peut varier. Nous pouvons citer les ondes de volume, les ondes de Rayleigh et les ondes de Lamb.

Les **ondes de volume** sont appelées ainsi car elles se propagent dans des milieux infinis. La vitesse et l'atténuation de ces ondes dépendent uniquement des propriétés du milieu de propagation. Les ondes longitudinales sont polarisées dans la direction de propagation, tandis que les ondes transversales sont polarisées perpendiculairement à celle-ci.

Les **ondes de Rayleigh** se propagent à la surface d'un milieu semi-infini, dans la pratique lorsque l'épaisseur de la structure est très grande devant la longueur d'onde. Une des caractéristiques de ces ondes est que leur vitesse est indépendante de la fréquence [ROY96].

Les **ondes de Lamb** se propagent dans une structure dont l'épaisseur est de l'ordre de la longueur d'onde. Il existe deux types de vibrations des plaques pour les ondes de Lamb, les modes symétriques (notés S) et antisymétriques (notés A), dont la vitesse dépend de la fréquence, dans certains domaines fréquentiels. La Figure.III.1 représente la vitesse de phase de plusieurs familles de modes des ondes de Lamb en fonction de la fréquence pour un des PE étudiés, le PE A_{que} d'épaisseur 6 mm. Chaque mode est associé à une distribution du déplacement de la matière à travers l'épaisseur du matériau en fonction de la fréquence. Nous constatons que ces ondes présentent plusieurs familles de modes dont les modes fondamentaux S_0 et A_0 qui se propagent dans les milieux quel que soit la fréquence et correspondent respectivement à des modes de compression et de flexion [GOR91]. La dispersion de vitesse est importante aux très basses fréquences pour le mode A_0 et autour de 100 kHz pour le mode S_0 dans le cas d'une plaque de PE A_{que} d'épaisseur 6 mm. Lorsque la fréquence augmente la vitesse de ces modes fondamentaux converge vers celle des ondes de Rayleigh. Les modes d'ordres supérieurs (A_n et S_n , avec $n \geq 1$) présentent une fréquence de coupure en-dessous de laquelle les ondes ne peuvent

pas se propager dans la structure. Pour ces modes, la dispersion de vitesse de ces modes est très grande au voisinage de la fréquence de coupure. Lorsque la fréquence augmente la vitesse de l'ensemble des modes d'ordres supérieurs tend vers celle des ondes transversales.

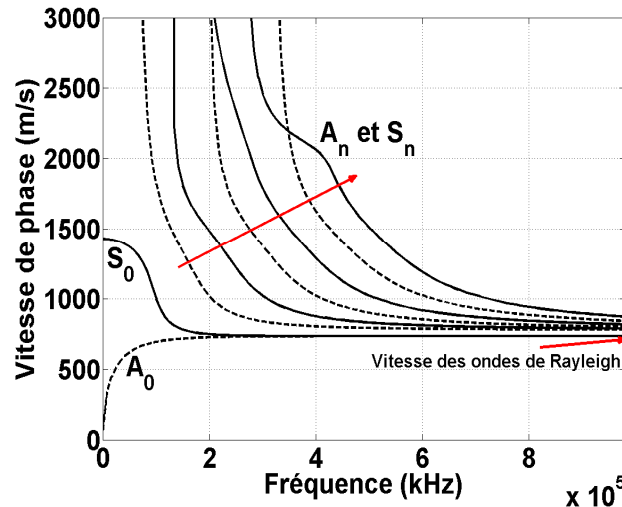


Figure.III.1. Courbes de dispersion de la vitesse de phase des premiers modes des ondes de Lamb, (-) modes symétriques et (--) modes antisymétriques, se propageant dans une plaque de PE A_{que} d'épaisseur 6 mm.

Ainsi, les ondes de volume se propagent librement dans les matériaux, tandis que les ondes de Rayleigh et de Lamb sont guidées.

Les paramètres US des ondes de volume ne dépendent donc que des propriétés du matériau, en particulier l'atténuation est uniquement liée à la microstructure du matériau, c'est-à-dire à l'absorption et à la diffusion (qui est négligeable dans les PE à l'état non déformé).

Dans le cas des ondes guidées, les paramètres US dépendent en plus de la géométrie de la structure. En effet, selon la longueur d'onde du signal par rapport à l'épaisseur du matériau, des modes de vibrations différentes peuvent se propager dans le milieu, comme cela est le cas des ondes de Lamb. La vitesse de chacun des modes des ondes de Lamb dépend de la fréquence, ce qui conduit à une déformation du train d'ondes se propageant dans le milieu. Par conséquent, la dispersion de vitesse s'ajoute à l'absorption et à la diffusion dans l'atténuation de ce type d'ondes.

Dans un premier temps, notre travail se porte sur l'étude de la propagation des ondes guidées et des ondes de volume dans la zone utile d'éprouvettes de traction. Cette étude nous permettra de mieux comprendre la propagation des ondes dans les PE, en vue d'utiliser la technique d'EA pour caractériser la déformation plastique et l'endommagement de ces matériaux.

2.2. MODIFICATIONS DU SIGNAL : DU GENERATEUR AU RECEPTEUR

Afin de bénéficier d'une bonne reproductibilité des signaux US, nous avons choisi de générer les signaux à l'aide d'un capteur d'EA, similaire à ceux utilisés pour les essais instrumentés en EA que nous verrons au chapitre suivant. Les signaux US sont enregistrés à l'aide du même système d'acquisition que celui utilisé pour la détection de signaux d'EA. Ainsi, un signal US est enregistré tant que son amplitude dépasse le seuil de détection.

Au cours de ce travail, nous avons choisi de générer des signaux électriques de type carré d'une courte durée (1 μ s) pour lesquels les échelons en amplitude correspondent à des excitations quasi-impulsionnelles (Figure.III.2), ce qui implique que ce signal présente un large contenu

fréquentiel. Ces excitations électriques imposées au capteur émetteur vont déformer la pastille piézoélectrique dont les faces vont se mettre à osciller. Toutefois, cette transcription en mouvements vibratoires, appelée conversion électro-mécanique, n'est pas parfaitement fidèle au signal électrique car le capteur possède une fonction de transfert, c'est-à-dire que sa réponse varie en fonction de la fréquence. Ainsi, l'onde US transmise au matériau n'est qu'une image déformée du signal électrique à travers le capteur émetteur. Le contact entre le capteur et le matériau est assuré par une fine couche d'un couplant peu visqueux (graisse à vide) afin de réduire son influence sur les mesures. Lors de son trajet dans le matériau, les paramètres du train d'ondes US subissent d'importantes modifications. Ce paquet d'ondes est ensuite enregistré par le capteur récepteur. Pour ce travail, le capteur utilisé est résonant (identique à celui utilisé pour la détection de signaux d'EA) ce qui implique qu'une fois de plus la transcription des mouvements de surface en signal électrique est fortement altérée par les caractéristiques du capteur. Ainsi, les paramètres du signal US entre l'émission et la réception sont considérablement modifiés, comme le montre la Figure.III.2 dans le cas d'un train d'ondes guidées se propageant le long de la zone utile d'une éprouvette de traction. Un signal électrique carré d'amplitude 10 V et de durée 1 μ s est imposé au capteur émetteur, après avoir transité à la surface d'un PE D_{que} puis avoir été enregistré par le capteur récepteur, la forme du signal collecté est très différente de celle de la source, et peut être ici comparée à une succession d'ondelettes. L'amplitude maximale du signal n'est plus que de 140 mV et sa durée est d'environ 60 μ s.

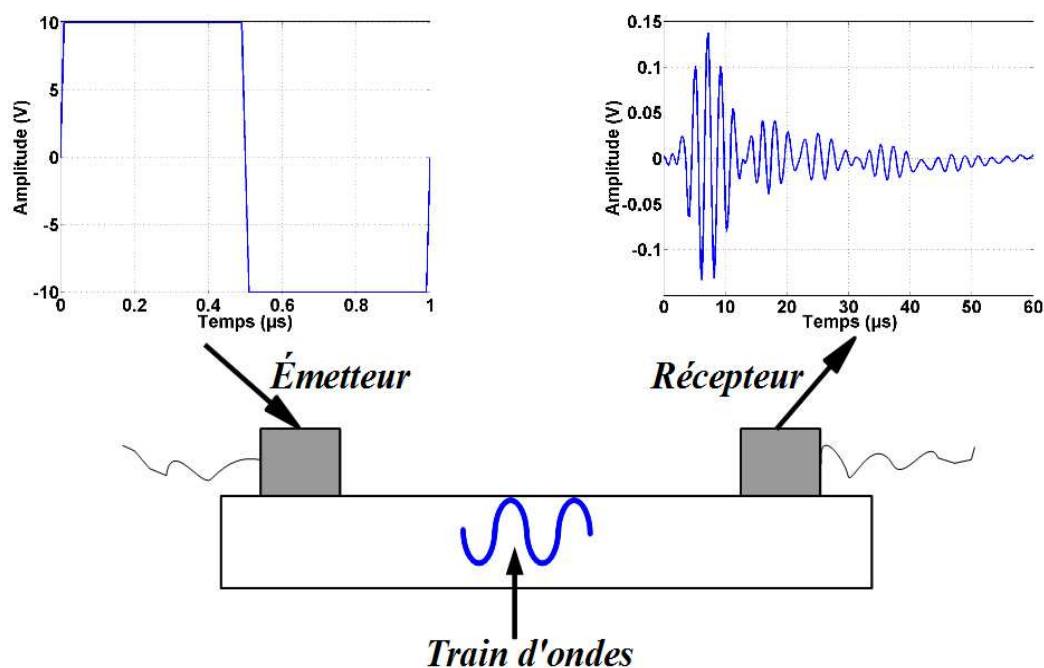


Figure.III.2. Modifications d'un signal US entre l'émission et la réception.

Par la suite, les ondes US désigneront simplement des ondes se propageant dans le matériau, et nous nommerons « signaux US », les ondes US qui ont transité dans le matériau puis qui ont été enregistrées par le capteur, c'est-à-dire leur transcription en signaux électriques.

Outre la forme du signal, le spectre de celui-ci est également affecté par la réponse (sensibilité en réception) du capteur récepteur. Le contenu fréquentiel du signal US enregistré, issu du signal carré généré par le capteur d'EA, est présenté sur la Figure.III.3. Nous remarquons que les fréquences comprises entre environ 350 et 600 kHz composent principalement le spectre du signal. Ce domaine fréquentiel se situe autour de la fréquence de résonance du capteur qui est d'environ 500 kHz.

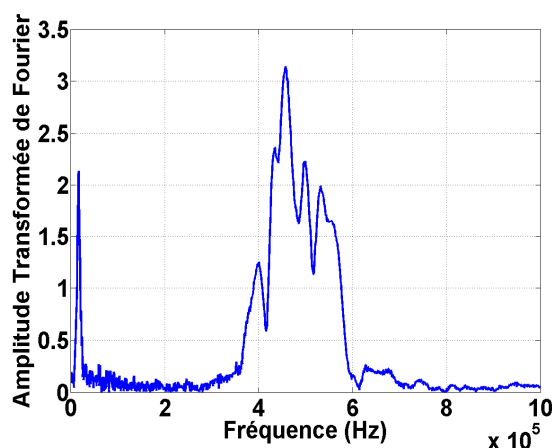


Figure.III.3. Spectre fréquentiel d'un signal US ayant transité à la surface d'un PE D_{que} .

Pour déterminer les caractéristiques du train d'ondes se propageant dans le matériau, il est nécessaire de faire une déconvolution du signal enregistré par les fonctions de transfert du capteur récepteur et du milieu de propagation. Néanmoins, au cours de ce travail, nous ne chercherons pas à déterminer les caractéristiques du train d'ondes se propageant dans le matériau.

2.3. ONDES GUIDEES

Pour nos investigations US, l'épaisseur des éprouvettes, identiques à celles utilisées pour l'instrumentation des essais de traction par EA, est plus petite que la largeur et la longueur de la zone utile. Ainsi, lorsque les matériaux libèrent de l'énergie acoustique issue des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement, les ondes se propageant dans l'éprouvette sont des ondes guidées. Si la longueur d'onde est de l'ordre de grandeur de l'épaisseur alors des ondes de Lamb se propagent dans le milieu alors que si la longueur d'onde est très inférieure à l'épaisseur alors ce sont des ondes de Rayleigh.

Par conséquent, l'emploi de la technique de contrôle US va nous permettre d'acquérir une meilleure compréhension de la propagation des ondes guidées le long de la zone utile des éprouvettes de traction de PE à l'aide d'une source US artificielle, « modèle » et parfaitement reproductible.

Pour cela, nous déterminerons l'influence de plusieurs facteurs sur quelques paramètres US : l'énergie, l'amplitude maximale, la durée et la fréquence moyenne. Nous verrons notamment l'influence de la distance de propagation, la fréquence de la source, l'épaisseur de l'éprouvette et du taux de cristallinité des PE sur l'atténuation des ondes guidées se propageant le long de la zone utile des éprouvettes de traction.

2.3.1. Effets de la distance de propagation sur les paramètres US

La Figure.III.4.a représente l'évolution de l'énergie du signal US en fonction de sa distance parcourue à la surface d'un PE D_{que} . Nous mettons en évidence que l'énergie décroît fortement avec la distance et peut être décrite par une exponentielle décroissante. Cette décroissance exponentielle en fonction de la distance est aussi observée sur l'amplitude maximale du signal (Figure.III.4.b). Nous constatons que l'ajustement exponentiel est meilleur sur l'énergie que sur les mesures de l'amplitude maximale. En effet, comme nous l'avons déjà vu, en plus de l'atténuation intrinsèque du matériau, la dispersion de vitesse des ondes de Lamb engendre une

altération de la forme du train d'ondes lors de sa propagation. Le fait que l'amplitude maximale du signal dépende de l'atténuation intrinsèque du milieu de propagation, et soit affectée par la dispersion de vitesse, engendre des erreurs dans le calcul de l'atténuation des ondes guidées dans le matériau. Afin de s'affranchir de ce problème, nous avons choisi de calculer l'atténuation des ondes guidées à partir de l'énergie. En effet, ce paramètre intègre l'ensemble du signal réduisant les erreurs de calcul de l'atténuation par la prise en compte de l'étalement du train d'ondes dû à la dispersion de vitesse. Ainsi, l'atténuation des ondes guidées de fréquence centrale 500 kHz dans la zone utile d'une éprouvette de traction de PE D_{que} est d'environ 568 dB/m. Nous vérifions donc que l'atténuation US est très élevée dans les PE ce qui peut essentiellement s'expliquer par la dissipation de l'énergie des ondes sous forme de chaleur lors de leur propagation.

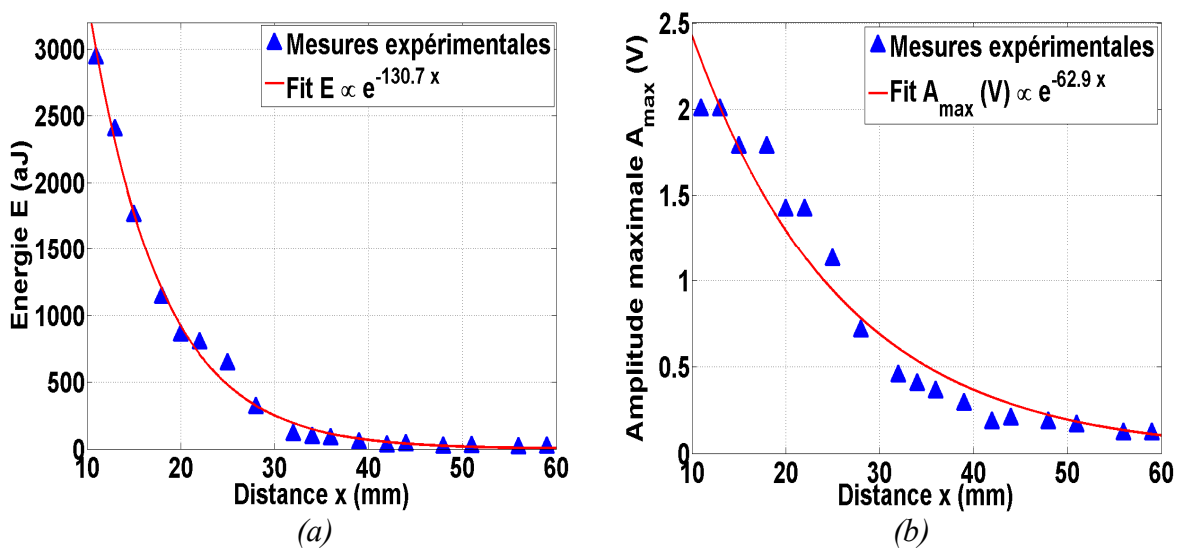


Figure.III.4. Evolution de (a) l'énergie et (b) l'amplitude maximale en fonction de la distance parcourue par des ondes guidées dans la zone utile d'une éprouvette de traction d'un PE D_{que}.

La durée des signaux diminue significativement en fonction de la distance (Figure.III.5.a). L'étalement du train d'ondes dû à la dispersion de vitesse devrait engendrer une augmentation de sa durée lorsque la distance de propagation augmente. Or, l'amplitude de la « queue » du signal décroît avec la distance ce qui implique que celle-ci passe plus rapidement sous le seuil de détection lorsque la distance de propagation augmente, d'où la diminution de la durée des signaux avec la distance.

La fréquence moyenne des signaux US diminue légèrement lorsque la distance augmente (Figure.III.5.b). En effet, celle-ci passe de 480 à 430 kHz lorsque les signaux ont parcouru 10 et 60 mm respectivement. Cette diminution s'explique par le fait que l'atténuation des composantes hautes fréquences des signaux est plus élevée que celle des basses fréquences. Ce comportement montre donc la dispersion d'atténuation des ondes guidées, c'est-à-dire qu'elle dépend de la fréquence, lorsque ces ondes se propagent dans la zone utile d'une éprouvette de traction d'épaisseur 5,7 mm. Ces mesures sont réalisées au contact ce qui signifie qu'il est très difficile d'avoir une bonne reproductibilité de la qualité du couplage entre le matériau et le capteur. Ainsi, de petits artéfacts peuvent apparaître lors des mesures, ce qui est le cas lorsque nous observons la légère augmentation de la fréquence autour de la distance de 30 mm.

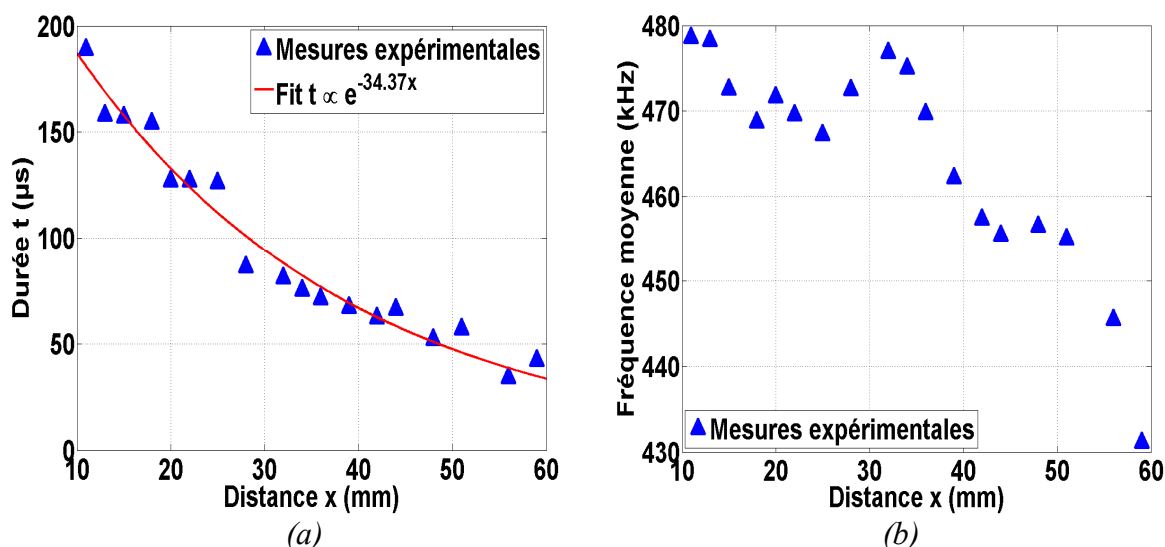


Figure.III.5. Evolution de (a) la durée et (b) la fréquence moyenne en fonction de la distance parcourue par des ondes guidées dans la zone utile d'une éprouvette de traction d'un PE D_{que} .

Nous pouvons conclure que les paramètres US des ondes guidées évoluent significativement avec la distance de propagation dans le matériau, ce qui est essentiellement dû à la forte atténuation de celui-ci.

2.3.2. Facteurs influençant l'atténuation

Comme vérifié précédemment, l'atténuation des ondes guidées dans les PE est très élevée. Nous entreprenons ici d'étudier l'effet de la fréquence du signal émis, de l'épaisseur de l'éprouvette et du taux de cristallinité du matériau sur l'atténuation des ondes guidées. Pour cela, nous avons effectué nos mesures dans la zone utile des éprouvettes de traction.

2.3.2.1. Effet de la fréquence

L'atténuation des ondes guidées issues de signaux composés d'une sinusoïde de fréquence centrale choisie entre 100 kHz et 1,2 MHz et se propageant le long de la zone utile d'un éprouvette de traction d'un PE D_{que} est présentée sur la Figure.III.6.a. Nous avons déterminé l'atténuation des signaux US à partir de la mesure de leur énergie en fonction de la distance de propagation, puis en effectuant un ajustement des mesures expérimentales par une exponentielle décroissante (Figure.II.14). Tout d'abord, nous constatons que l'atténuation augmente significativement avec la fréquence, passant d'environ 370 à 630 dB/m entre 100 kHz et 1,2 MHz. L'atténuation des ondes guidées dépend donc de la fréquence.

Cependant, l'atténuation présente deux comportements légèrement différents en fonction de la fréquence. En effet, celle-ci augmente fortement entre 100 et 600 kHz tandis qu'elle croît moins vite entre 600 kHz et 1,2 MHz. Ce changement de comportement, observé à cette fréquence de 600 kHz, s'explique par une évolution du type d'ondes guidées se propageant dans l'éprouvette de PE lorsque le rapport entre l'épaisseur du matériau et la longueur d'onde est environ égal à 1,7. Comme le montre la Figure.III.8.a, au-dessus de 600 kHz les modes fondamentaux A_0 et S_0 des ondes de Lamb sont quasiment confondus en un seul correspondant aux ondes Rayleigh ce qui implique une faible dispersion d'atténuation. Ainsi, nous pouvons penser qu'au-dessus de 600 kHz ce sont des ondes ayant un comportement proche des ondes de Rayleigh, peu dispersives, qui se propagent en surface du matériau. En revanche, en dessous de 600 kHz, les

ondes se propageant dans le matériau seraient des ondes de Lamb, dont la dispersion d'atténuation serait très importante.

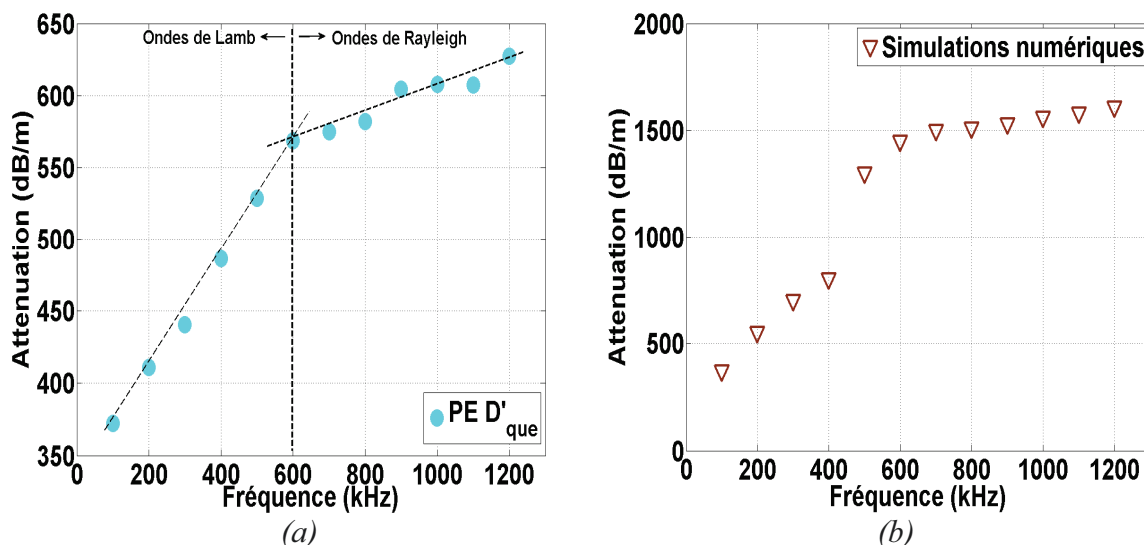


Figure.III.6. Atténuation des ondes guidées dans la zone utile d'une éprouvette en fonction de la fréquence. (a) Mesures expérimentales sur un PE D'que et (b) simulations numériques.

Ce changement de comportement de l'atténuation avec la fréquence a aussi pu être mis en évidence à partir de simulations numériques, effectuées à l'aide du logiciel de calculs éléments finis ABAQUS (version 6.11-2), comme nous pouvons le voir sur la Figure.III.6.b. Dans cette simulation, la géométrie 3D de l'éprouvette a été fidèlement représentée et les paramètres de la simulation sont les suivants :

- 38760 éléments de type C3D8R (Continuum, 3-D, 8-node, Reduced integration) de dimension caractéristique 800 μm , 46128 nœuds;
- Pas de temps de 10 ns. Durée totale de la simulation 4 ms soit 40 000 pas;
- Emetteur simulé par l'application d'une force de traction surfacique équirépartie sur une surface de 3 mm de diamètre placée dans le congé de l'éprouvette. La forme temporelle de l'excitation est une simple arche de sinusöide dont la période correspond à l'inverse de la fréquence visée. La Figure.III.7 montre que l'étendue spectrale des différentes sources utilisées augmente avec la fréquence (de 100 kHz en bleu foncé à 1,2 MHz en rouge foncé);
- Récepteur ponctuel déplacé le long du trajet des ondes dans la zone utile. La grandeur mesurée est la composante normale de la vitesse de déplacement de la surface de l'éprouvette. L'énergie du signal est calculée sur sa durée totale (4 ms).

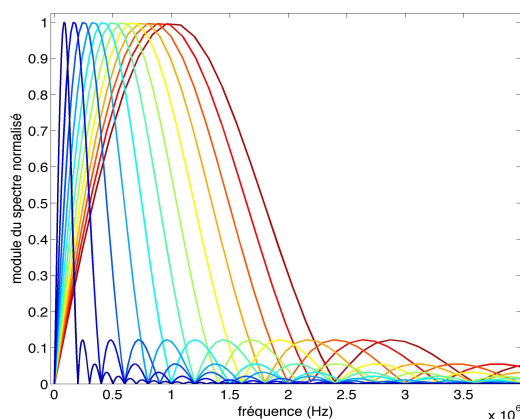


Figure.III.7. Amplitude normalisée des spectres en fonction de la fréquence des signaux générés pour les simulations numériques.

À partir des résultats de ces simulations, nous constatons bien qu'aux environs de 600 kHz l'atténuation croît moins vite avec la fréquence (Figure.III.6.b). Ces simulations révèlent aussi un saut de l'atténuation entre 400 et 500 kHz, qui n'est pas observé lors des mesures expérimentales. Cette différence peut être causée par le fait que dans les simulations numériques (i) la réponse du capteur récepteur en fonction de la fréquence n'est pas prise en compte signifiant que les signaux simulés ne sont pas affectés par la résonance du capteur, en particulier pour les signaux simulés de hautes fréquences et (ii) le récepteur est ponctuel engendrant que la mesure de l'énergie des signaux US simulés est effectuée en un seul point le long de leur trajet, tandis qu'elle est mesurée sous la surface du récepteur lors de nos mesures expérimentales.

2.3.2.2. Effet de l'épaisseur

L'épaisseur et la largeur d'une éprouvette diminuent tout au long d'un essai de traction, entraînant une réduction de la section du matériau. Cette réduction est homogène dans le domaine de déformation élastique alors qu'elle est hétérogène dans le domaine plastique due à la formation d'une striction au centre de l'éprouvette. Nous entreprenons ici simplement d'évaluer l'effet d'une diminution homogène de l'épaisseur d'une éprouvette sur l'atténuation des ondes guidées. Pour cela, nous avons généré des signaux carrés (quasi-impulsionnels) dont la fréquence centrale est de 500 kHz se propageant à la surface de la zone utile d'une éprouvette de traction de PE D_{que} dont l'épaisseur a été réduite progressivement de 5,7 à 3 mm.

Tout d'abord, une réduction de l'épaisseur du matériau engendre une évolution de la dispersion de vitesse des ondes guidées (Figure.III.8), pour des fréquences comprises dans le domaine de l'EA. En effet, nous remarquons qu'un plus grand nombre de modes peut se propager dans l'éprouvette d'épaisseur 5,7 mm que celle d'épaisseur 3 mm. De plus, une augmentation de la fréquence de coupure des modes apparaît également en diminuant l'épaisseur du matériau. Ainsi, l'épaisseur de l'éprouvette a bien une influence sur la propagation des ondes guidées, en particulier en restreignant le nombre de modes pouvant se propager dans la structure.

Cette restriction s'accompagne d'une augmentation significative de l'atténuation des ondes guidées lorsque l'épaisseur du matériau diminue (Figure.III.9). En effet, celle-ci passe d'environ 570 à 1150 dB/m lorsque l'épaisseur diminue de 5,7 à 3 mm.

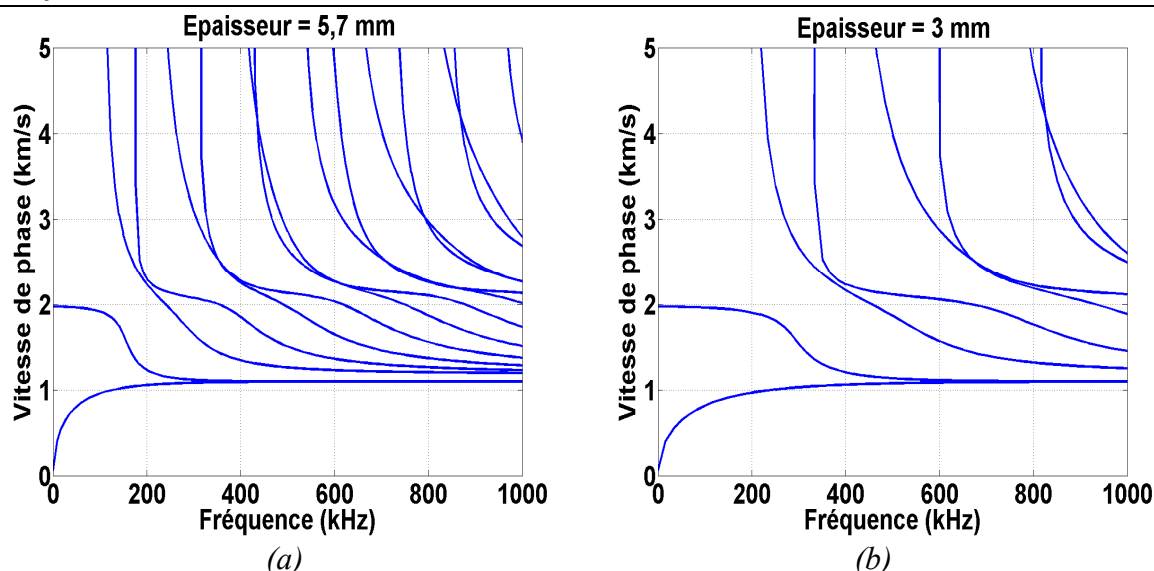


Figure.III.8. Courbes de dispersion de la vitesse de phase de l'ensemble de famille de modes des ondes de Lamb se propageant dans un PE D_{que} d'épaisseur (a) 5,7 mm et (b) 3 mm.

Des simulations numériques, réalisées à l'aide du logiciel de calculs éléments finis ABAQUS, ont permis de montrer une bonne corrélation avec les mesures expérimentales, comme le montre la Figure.III.9. Comme précédemment, la simulation représente fidèlement la géométrie 3D des différentes éprouvettes usinées avec des épaisseurs de plus en plus réduites. Les paramètres de la simulation sont les mêmes que ceux présentés plus haut en termes de nombre d'éléments (38760 éléments pour l'éprouvette de 5,7 mm d'épaisseur, nombre qui tombe aux environs de 34000 éléments pour l'éprouvette la plus fine), de pas de temps (10 ns), de durée totale de la simulation (4 ms), de la taille et du positionnement de l'émetteur et du récepteur. La différence entre les mesures expérimentales et la simulation concerne le type d'excitation en termes de variation temporelle de la force appliquée. Dans le cas de la simulation, nous avons utilisé une ondelette de type « pulse gaussien », à savoir 2,5 périodes de sinusoïde enveloppées par une gaussienne de 4 μ s de largeur. En conséquence, le domaine fréquentiel de cette source s'étend de 200 kHz à 1 MHz. Nous avons ainsi tenté de reproduire une force à l'image de celle appliquée expérimentalement par les transducteurs US lorsqu'ils sont excités par les signaux carrés (Figure.II.7.b).

Ces résultats montrent ainsi l'importance de la géométrie sur la propagation des ondes guidées et en particulier sur leur atténuation. Ainsi, nous pouvons d'ores et déjà dire qu'outre, la déformation plastique et l'endommagement des PE au cours des essais de traction, la réduction de la section de l'éprouvette à cause de la formation d'une striction impactera significativement la propagation des ondes guidées.

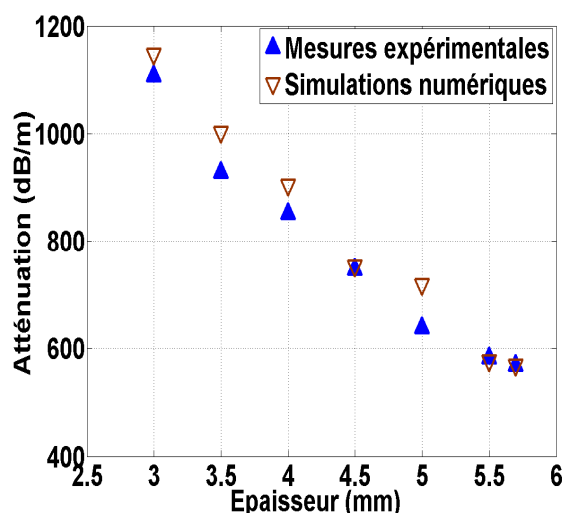


Figure.III.9. Atténuation des ondes guidées de fréquence centrale 500 kHz en fonction de l'épaisseur d'une éprouvette de PE D_{que} .

2.3.2.3. Effet du taux de cristallinité

Il est connu que l'atténuation dépend de la microstructure des matériaux dans lesquels les ondes US se propagent [PLO06]. Cependant, l'effet de la microstructure des polymères semi-cristallins sur l'atténuation d'ondes guidées n'a que rarement été mis en évidence. Nous entreprenons donc d'étudier l'influence du taux de cristallinité des PE sur l'atténuation des ondes guidées se propageant dans la zone utile des éprouvettes de traction. Pour cela, nous avons généré des signaux de type 1 (Figure.II.7.a) sinusoïdal de fréquence 500 kHz correspondant à la fréquence de résonance du capteur récepteur.

La Figure.III.10 montre l'atténuation des ondes guidées de fréquence 500 kHz en fonction du taux de cristallinité des PE étudiés. Nous remarquons que l'atténuation décroît significativement de 790 à 430 dB/m lorsque la cristallinité du matériau augmente de 48 à 79 %. Cette diminution présente un comportement linéaire et met en évidence que l'atténuation dépend de la microstructure des PE.

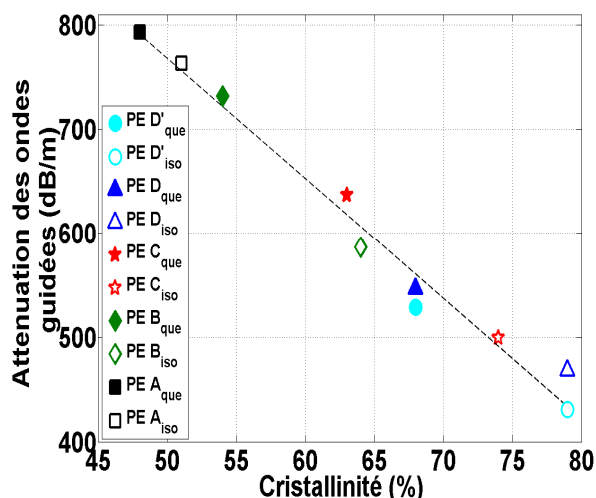


Figure.III.10. Atténuation des ondes guidées de 500 kHz dans la zone utile des éprouvettes de traction des PE en fonction de leur taux de cristallinité.

Dans cette partie, nous avons étudié l'évolution des paramètres US des ondes guidées se propageant le long de la zone utile des éprouvettes de traction de PE. Nous avons vu que l'atténuation de ce type d'ondes est élevée dans les PE, celle-ci augmente avec la fréquence des ondes. Une diminution de l'épaisseur conduit également à une augmentation de l'atténuation. De plus, une forte modification des paramètres des signaux US est observée lorsque la distance de propagation augmente. Enfin, nous avons montré que le taux de cristallinité a une influence sur la propagation. En effet, l'atténuation diminue significativement lorsque le taux de cristallinité augmente.

Par conséquent à partir de ces mesures US, nous pouvons d'ores et déjà faire quelques remarques quant à l'objectif, du prochain chapitre, de détecter des signaux d'EA issus des mécanismes de plasticité et d'endommagement des matériaux étudiés. Premièrement compte tenu de la forte atténuation des ondes US, la distance entre la source et le capteur ne doit pas être trop grande afin que l'amplitude maximale des signaux reste supérieure au seuil d'acquisition après propagation dans le matériau. Deuxièmement, la formation d'une striction qui se caractérise par une réduction significative de l'épaisseur et de la largeur de l'éprouvette lors d'un essai de traction, il semble peu probable d'enregistrer des signaux originaires des mécanismes apparaissant en son sein. Troisièmement, nous pouvons penser que le nombre de signaux d'EA détectés sera plus faible pour les PE les moins cristallins car l'atténuation des ondes US y est plus élevée que dans les PE les plus cristallins.

2.4. ONDES DE VOLUME

Dans la seconde partie de ce chapitre, nous étudierons la déformation plastique et de l'endommagement de PE à l'aide d'ondes guidées, se propageant le long de la zone utile des éprouvette de traction c'est-à-dire dans la direction de traction (Figure.II.10.a), et d'ondes longitudinales, transitant dans les éprouvettes suivant leur épaisseur c'est-à-dire perpendiculairement à l'axe de traction (Figure.II.10.b).

Nous entreprenons de montrer l'influence du taux de cristallinité sur l'atténuation et la vitesse des ondes longitudinales et transversales afin de comparer la propagation des ondes de volume dans les PE.

2.4.1. Atténuation

L'atténuation des ondes US peut être décrite en fonction de la fréquence par une loi puissance pour une large gamme de matériaux, en particulier les matériaux viscoélastiques. Wu [WU96] a montré que l'atténuation des ondes de volume est directement proportionnelle à la fréquence dans le cas de HDPE et de LDPE. Nous ne chercherons pas à vérifier ce comportement mais nous montrerons l'effet du taux de cristallinité sur l'atténuation des ondes longitudinales et transversales.

Par nos mesures en immersion dans l'eau pour les ondes longitudinales (Figure.III.11.a) et au contact pour les ondes transversales (Figure.III.11.b), nous constatons que l'atténuation des ondes de volumes décroît lorsque le taux de cristallinité augmente. De plus, nous vérifions que l'atténuation des ondes longitudinales est plus faible que celles des ondes transversales. En effet, l'atténuation des ondes longitudinales varie d'environ 230 à 480 dB/m lorsque le taux de cristallinité diminue de 79 à 48 %, tandis que celle des ondes transversales varie d'environ 3250 à 3600 dB/m.

Cette diminution de l'atténuation lorsque le taux de cristallinité augmente s'explique par le fait que les ondes US traversent un milieu contenant une proportion de phase amorphe de plus en plus faible. En effet, à la fréquence de 500 kHz la longueur d'onde est d'environ 6,7 mm ce qui est bien plus grand que les dimensions des empilements lamellaires amorphes et cristallins. Ainsi, l'onde traverse un milieu moyen qui est homogène et isotrope composé respectivement d'une fraction volumique φ_a de phase amorphe et φ_c de phase cristalline. Ainsi, selon la loi des mélanges, le coefficient d'atténuation α d'une onde se propageant dans le milieu est simplement la somme des coefficients d'atténuation de la phase amorphe α_a et cristalline α_c pondérés par les proportions des deux phases dans le milieu traversé :

$$\alpha = \varphi_c \alpha_c + \varphi_a \alpha_a \quad (Eq.III. 1)$$

L'atténuation de la phase amorphe étant plus élevée que celle du cristal, lorsque la proportion de la phase cristalline augmente l'atténuation du milieu moyen traversé par les ondes diminue.

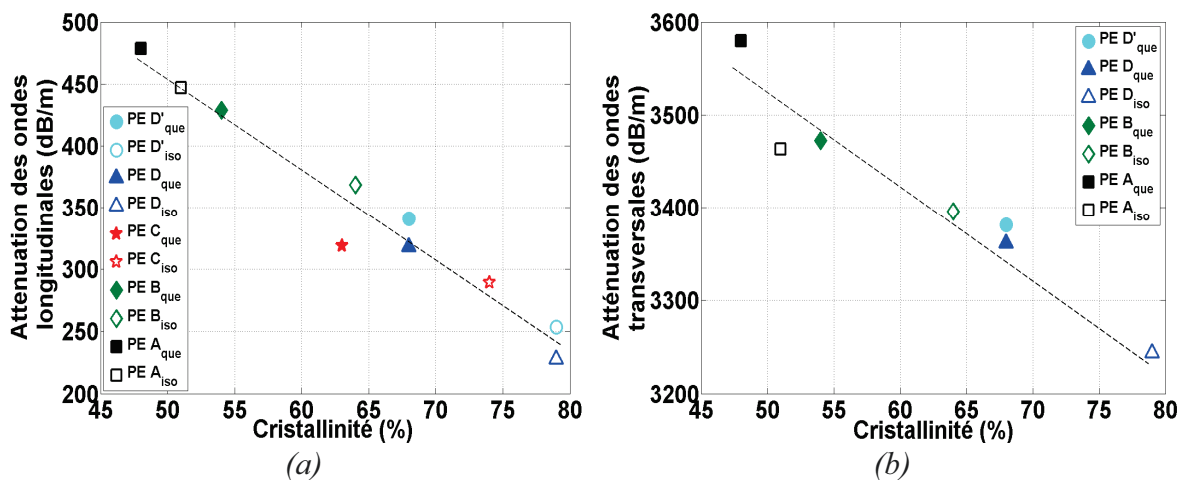


Figure.III.11. Atténuation des ondes (a) longitudinales à 300 kHz et (b) transversales à 1 MHz en fonction du taux de cristallinité des PE. Les lignes pointillées indiquent la tendance.

2.4.2. Vitesse

La détermination des vitesses des ondes de volume se propageant dans les polymères semi-cristallins a déjà été étudiée par de nombreux auteurs [DAV62, SCH59, YAM99]. Wu [WU96] a montré que contrairement à l'atténuation, la dispersion de vitesse de ce type d'ondes est très faible.

La vitesse des ondes longitudinales et transversales en fonction du taux de cristallinité des PE est présentée sur la Figure.III.12. Nous constatons que la vitesse des ondes de volume augmente linéairement avec le taux de cristallinité. La vitesse des ondes longitudinales des PE est comprise entre 1940 et 2270 m/s tandis que celle des ondes transversales varie entre 790 et 1250 m/s, lorsque le taux de cristallinité augmente de 48 à 79 %. Les ondes longitudinales se déplacent donc environ 2 fois plus vite que les ondes transversales, ce qui est un comportement observé par de nombreux auteurs [MAR69, PAL95].

La vitesse des ondes de volume est directement liée aux propriétés élastiques des matériaux, et en particulier au module d'Young (Eq.I. 6 et 7). Ce module est beaucoup plus élevé pour le cristal (environ 7 GPa) que celui de la phase amorphe (environ 150 MPa). L'augmentation de la

vitesse des ondes de volume avec le taux de cristallinité s'explique par le fait que la proportion de la phase cristalline, dans le milieu moyen traversé par les ondes, augmente. Par conséquent, les ondes « voient » un milieu moyen qui présente un module d'Young plus élevé lorsque le taux de cristallinité du matériau augmente.

Par la suite, nous suivrons l'évolution de la vitesse des ondes longitudinales au cours d'essais de traction (partie 3.2.2.2).

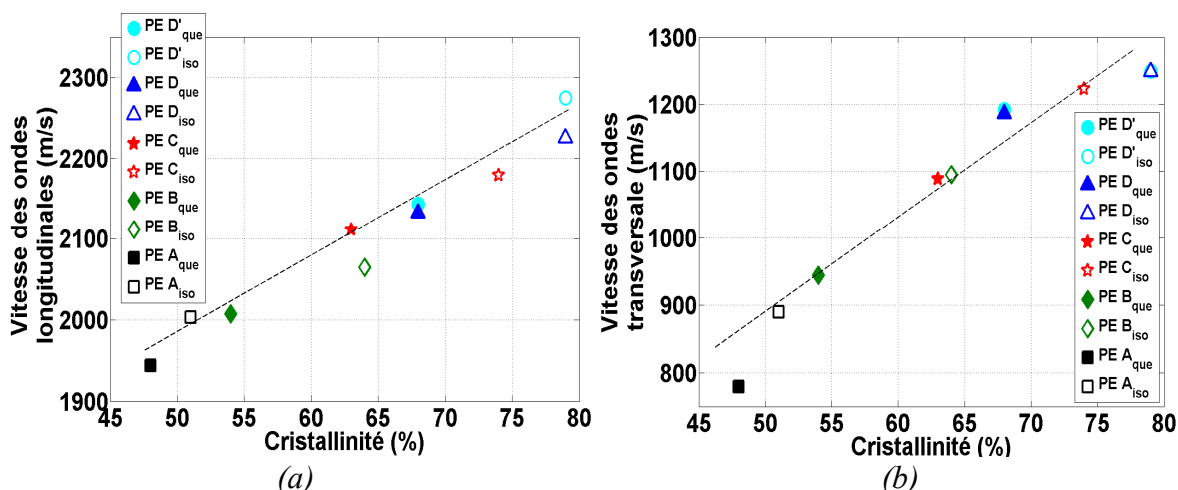


Figure.III.12. Vitesse des ondes (a) longitudinales et (b) transversales en fonction du taux de cristallinité des PE. Les lignes pointillées indiquent la tendance.

2.4.3. Constantes élastiques

À partir de la vitesse des ondes longitudinales et transversales, nous pouvons déterminer les modules longitudinal M , de cisaillement G , et d'Young E (Eq.I. 6 et 7). Le module M est calculé à partir de la vitesse des ondes longitudinales qui se propagent exclusivement par des mouvements de compressions parallèlement à la direction de propagation au sein de la matière. Le module G est déterminé à partir de la valeur de la vitesse des ondes de cisaillement qui transitent dans les milieux uniquement par des mouvements de cisaillement perpendiculairement à la direction de propagation. Le module E peut être exprimé en fonction des modules M et G . La valeur de ces modules est représentée en fonction du taux de cristallinité des PE sur la Figure.III.13. Nous remarquons que ces modules augmentent quasi-linéairement avec le taux de cristallinité. Le module longitudinal est compris entre 3,5 et 5 GPa, le module de cisaillement entre 0,6 et 1,5 GPa, et le module d'Young entre environ 1,5 et 4 GPa.

Par la suite, une partie de nos investigations se portera sur l'étude de la déformation plastique et l'endommagement des PE perpendiculairement à l'axe de traction (Figure.II.10.b). Pour cela, nous utiliserons des ondes de volume qui seront générées à l'aide d'un capteur, similaire à ceux utilisés en EA. Cependant, ces capteurs ne sont pas conçus pour générer un type d'onde particulier. Ainsi, la nature des ondes générées n'est pas parfaitement connue. Néanmoins, comme nous l'avons déjà indiqué, le couplant utilisé entre le capteur et le matériau est de la graisse à vide. Ce couplant est peu visqueux ce qui implique que les composantes transversales des ondes ne sont probablement pas enregistrées par le capteur récepteur, et les signaux US collectés peuvent être assimilés à l'acquisition d'ondes longitudinales. Au cours des essais de traction, nous pourrions suivre l'évolution du module longitudinal M car celui-ci est directement lié à la vitesse des ondes longitudinales. Le suivi du module d'Young E est plus

difficile à réaliser car il nécessite de connaître l'évolution du coefficient de Poisson au cours des essais. La détermination de ce dernier nécessiterait la mesure des ondes de cisaillement qui n'est pas accessible par nos mesures.

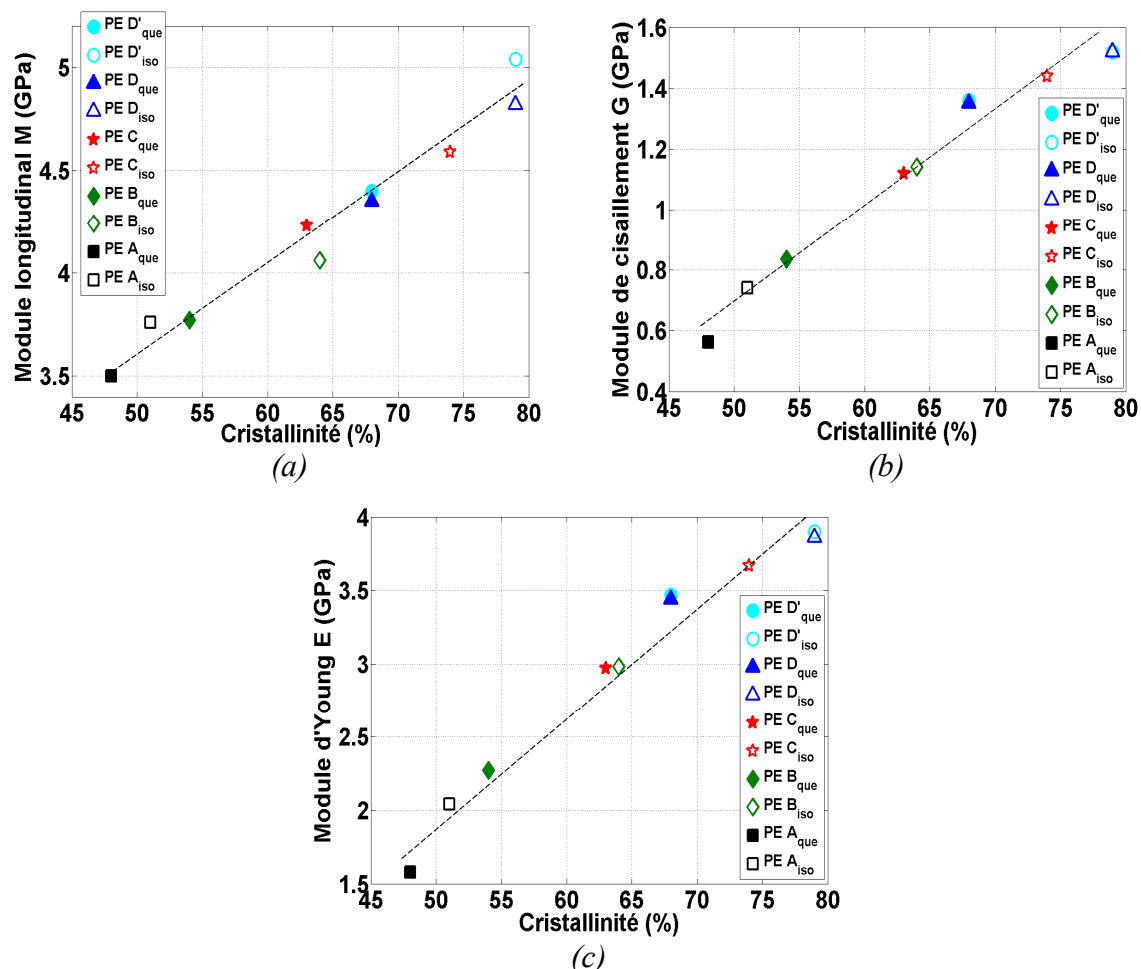


Figure.III.13. Modules (a) longitudinal M , (b) de cisaillement G et (c) d'Young E en fonction du taux de cristallinité des PE. Les lignes pointillées indiquent la tendance.

Dans cette partie, nous avons étudié la propagation des ondes guidées et des ondes de volume dans des éprouvettes de traction de PE présentant des taux de cristallinité variés. Nous avons vérifié que l'atténuation US dans ces matériaux est élevée pour tous les types d'ondes étudiés. Une importante modification des paramètres US est observée lorsque la distance de propagation des ondes guidées augmente. Nous avons mis en évidence que l'atténuation augmente avec la fréquence de la source et qu'un changement du type d'onde se propageant dans le matériau apparaît lorsque la longueur d'onde est d'environ la moitié de l'épaisseur du matériau. L'atténuation des ondes guidées augmente lorsque l'épaisseur du matériau diminue alors qu'elle diminue lorsque le taux de cristallinité augmente. Nous avons vérifié que l'atténuation et la vitesse des ondes de volume dépend également du taux de cristallinité des PE. Enfin, nous avons vu que l'atténuation des ondes longitudinales est plus faible que celle des ondes transversales.

3. SUIVI DE LA DÉFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT DE PE PAR ONDES US LORS D'ESSAIS DE TRACTION

Dans cette partie, nous montrerons l'influence des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement ainsi que l'impact de l'évolution de la géométrie des éprouvettes due à la formation de la striction sur la propagation des ondes US. Pour cela, l'ensemble des essais de traction ont été réalisés à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ sur des éprouvettes de PE présentant un taux de cristallinité qui varie de 48 à 79 %. Comme nous l'avons déjà indiqué, ces PE diffèrent également par leurs mécanismes de formation de la cavitation au cours des essais [HUM10a, HUM10b, XIO13] :

- Le PE A_{que} (48 %) et le PE B_{que} (54 %) (PE les moins cristallins) se déforment en l'absence de cavitation;
- Les PE de taux de cristallinité intermédiaire se déforment en présence de cavitation après le seuil de plasticité : le PE A_{iso} (51 %), le PE B_{iso} (64 %), le PE C_{que} (63 %) et le PE D_{que} (68 %);
- Pour les PE les plus cristallins, le PE C_{iso} (74 %) et le PE D_{iso} (79 %), des micro-cavités se forment avant le seuil de plasticité.

Dans une première partie, nous rappellerons les différents mécanismes de plasticité et d'endommagement qui peuvent influencer la propagation des ondes US dans les PE.

Dans une deuxième partie, nous montrerons simplement l'évolution des paramètres des ondes guidées, se propageant le long de la zone utile des éprouvettes de traction, et des ondes longitudinales, qui transitent suivant l'épaisseur des éprouvettes, au cours d'un essai de traction pour un des PE étudiés : le PE D_{que}.

Enfin dans une dernière partie, nous montrerons l'influence géométrique de la striction ainsi que celle des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement sur l'évolution des paramètres US au cours des essais pour l'ensemble des PE étudiés.

3.1. RAPPEL DES DIFFÉRENTS MÉCANISMES DE PLASTICITÉ ET D'ENDOMMAGEMENT

Rappelons qu'à l'état non déformé, les empilements lamellaires cristallins et amorphes s'arrangent sous forme de sphérolites : on parle alors de structure sphérolitique. Au cours d'un essai de traction, cette structure demeure inchangée dans le domaine de déformation élastique car tous mécanismes y sont réversibles. Ce domaine élastique s'étend jusqu'au seuil de plasticité à partir duquel il est fréquemment admis que la déformation plastique des lamelles cristallines s'initie. Au cours de ce stade de déformation, plusieurs micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissent au sein du matériau subissant ainsi une transformation de sa structure sphérolitique en une structure fibrillaire.

Parmi les mécanismes pouvant affecter la propagation des ondes US, nous pouvons citer :

- le **cisaillement des lamelles cristallines** conduit à leur **fragmentation en blocs cristallins** au niveau du seuil de plasticité. Ce dernier mécanisme est dû à des glissements cristallographiques qui entraînent la destruction du réseau de lamelles cristallines engendrant une structure fibrillaire [GAL03]. La rupture des lamelles cristallines affecte

les propriétés élastiques du matériau ce qui signifie que l'état du réseau cristallin devrait avoir une influence sur la propagation des ondes US;

- la **transformation martensitique** est associée à une modification de l'orientation cristallographique des chaînes dans la phase cristalline sous contrainte. Cette transformation n'a pas lieu dans tous les polymères semi-cristallins, mais elle apparaît dans le PE et le PVDF lors d'essais de traction [HSU89, LIN94]. Himbert *et al.* [HUM09] ont montré que dans le cas des PE utilisés pour nos investigations, la transformation martensitique s'initie avant le seuil de plasticité. Cependant, dans le cas des PE, les propriétés élastiques de la maille monoclinique obtenue sous contrainte ne doivent pas être très différentes de celles de la maille orthorhombique initiale. Par conséquent, il est probable que ce mécanisme affecte peu les paramètres US;
- la **cavitation** est un phénomène de formation de micro-cavités (vide) associé à l'endommagement du matériau. Ces micro-cavités se forment entre la phase amorphe et les lamelles cristallines [PAW14], et engendre une diminution de la densité du matériau. Plusieurs auteurs ont montré que la présence de porosités au sein d'un matériau entraîne une diminution de la vitesse et une augmentation de l'atténuation des ondes US [CHE09, JEO95, TAV92]. Ce mécanisme devrait donc affecter la propagation des ondes US au cours d'un essai de traction;
- l'**orientation des chaînes macromoléculaires de la phase amorphe** dans l'axe de traction accompagne également la déformation plastique du cristal. Le dépliement des chaînes au cours de la transformation fibrillaire s'accompagne d'une fusion locale d'une partie des cristaux. Cette orientation engendre la cristallisation d'une partie des chaînes entre les blocs cristallins au cours des essais. En s'orientant progressivement lors d'un essai, le matériau devient progressivement anisotrope et l'atténuation intrinsèque de la phase amorphe tend vers celle du cristal. En effectuant des mesures US *in situ* au cours d'un essai de traction, Yamaguchi *et al.* [YAM99] ont suggéré que ce mécanisme entraîne une diminution de l'atténuation des ondes.

Une évolution géométrique de l'éprouvette apparaît également au cours des essais de traction. En effet, outre l'allongement du matériau dans l'axe de traction, une diminution homogène de l'épaisseur et de la largeur de l'éprouvette sous l'effet de Poisson a lieu dans le domaine élastique. En revanche, dans le domaine de déformation plastique cette réduction est hétérogène à cause de la formation d'une striction au centre de la zone utile de l'éprouvette. Comme nous l'avons montré précédemment la diminution seule de l'épaisseur de l'éprouvette affecte la propagation des ondes. Par conséquent, la réduction simultanée de l'épaisseur et de la largeur devrait entraîner une importante augmentation de l'atténuation des ondes. Ainsi, nous évaluerons également l'influence de la formation de la striction sur les paramètres des ondes US.

3.2. EVOLUTION DES PARAMETRES US LORS D'UN ESSAI DE TRACTION SUR UN DES POLYMERES ETUDIES, LE PE D_{QUE}

3.2.1. Suivi des paramètres des ondes guidées

Dans cette partie, nous étudierons l'évolution des paramètres US des ondes guidées lors d'un essai de traction à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ sur une éprouvette de PE D_{que} qui se déforme en présence du mécanisme de cavitation apparaissant après le seuil de plasticité. Nous avons vu précédemment qu'une diminution homogène de l'épaisseur de l'éprouvette engendre une augmentation importante de l'atténuation des ondes guidées. Une évolution

significative de la géométrie de l'éprouvette a lieu lors de la formation de la striction au cours d'un essai de traction. Cette dernière s'accompagne d'une réduction hétérogène de l'épaisseur et de la largeur au centre de l'éprouvette. Néanmoins, dans la striction, la largeur reste plus grande que l'épaisseur tout au long de l'essai d'une part, et de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde d'autre part. Ainsi, l'effet géométrique de la diminution de l'épaisseur est toujours prépondérant sur la réduction de la largeur de l'éprouvette.

Les Figure.III.14.a et b représentent l'évolution de l'énergie des signaux US en fonction de la déformation nominale suivant une échelle linéaire et logarithmique. Une légère décroissance de l'énergie est observée dans le domaine élastique tandis qu'une forte diminution apparaît au niveau du seuil de plasticité. Dans le domaine de déformation plastique, l'énergie des signaux chute, passant d'environ 500 à 4 aJ jusqu'aux environs de 120 % de déformation à partir de laquelle une très légère augmentation (seulement 2 aJ) est observée jusqu'à la fin de l'essai.

Dans le domaine de déformation purement élastique, la décroissance de l'énergie pourrait s'expliquer simplement par l'allongement de la distance entre les capteurs, comme le représente la ligne pointillée noire sur les Figure.III.14.a et b. En effet, comme nous l'avons déjà vu, l'énergie des signaux US décroît exponentiellement lorsque la distance de propagation augmente (Figure.III.4.a). Afin de montrer uniquement l'effet de l'allongement de la distance entre les capteurs au cours de l'essai, nous avons considéré ici la décroissance énergétique d'une onde guidée de fréquence 500 kHz se propageant le long de la zone utile d'une éprouvette de PE D_{que} dont le coefficient d'atténuation est montré sur la Figure.III.10. La décroissance de cette ligne pointillée représente donc uniquement la perte d'énergie des signaux transitant dans le matériau sain sous l'effet de l'augmentation de la distance de propagation entre les capteurs émetteur et récepteur. En effet, l'évolution de l'énergie des signaux US est similaire à celle de la décroissance de l'énergie uniquement sous l'effet de l'augmentation de la distance entre les capteurs émetteur et récepteur dans le domaine élastique.

Dans le domaine anélastique, l'évolution de l'énergie n'est plus corrélée à l'allongement de la distance entre les capteurs, et devient supérieure à celle-ci. Dans ce domaine, nous pouvons penser que l'initiation de l'orientation des chaînes macromoléculaires de la phase amorphe dans la direction de traction pourrait favoriser la propagation des ondes et engendrer une diminution de l'atténuation.

Au niveau du seuil de plasticité, nous observons une forte décroissance de l'énergie que nous pourrions attribuer à l'apparition de mécanismes de plasticité et d'endommagement au sein du matériau, en particulier à la fragmentation des lamelles cristallines en petits blocs dès le seuil, d'une part, et à l'amorçage de la formation de la striction d'autre part. Cette décroissance de l'énergie se poursuit jusqu'à environ 120 % de déformation.

En fin d'essai (à partir de 120 %), nous remarquons une légère remontée de l'énergie que nous pourrions de nouveau attribuer à l'orientation des chaînes de la phase amorphe dans la direction de traction.

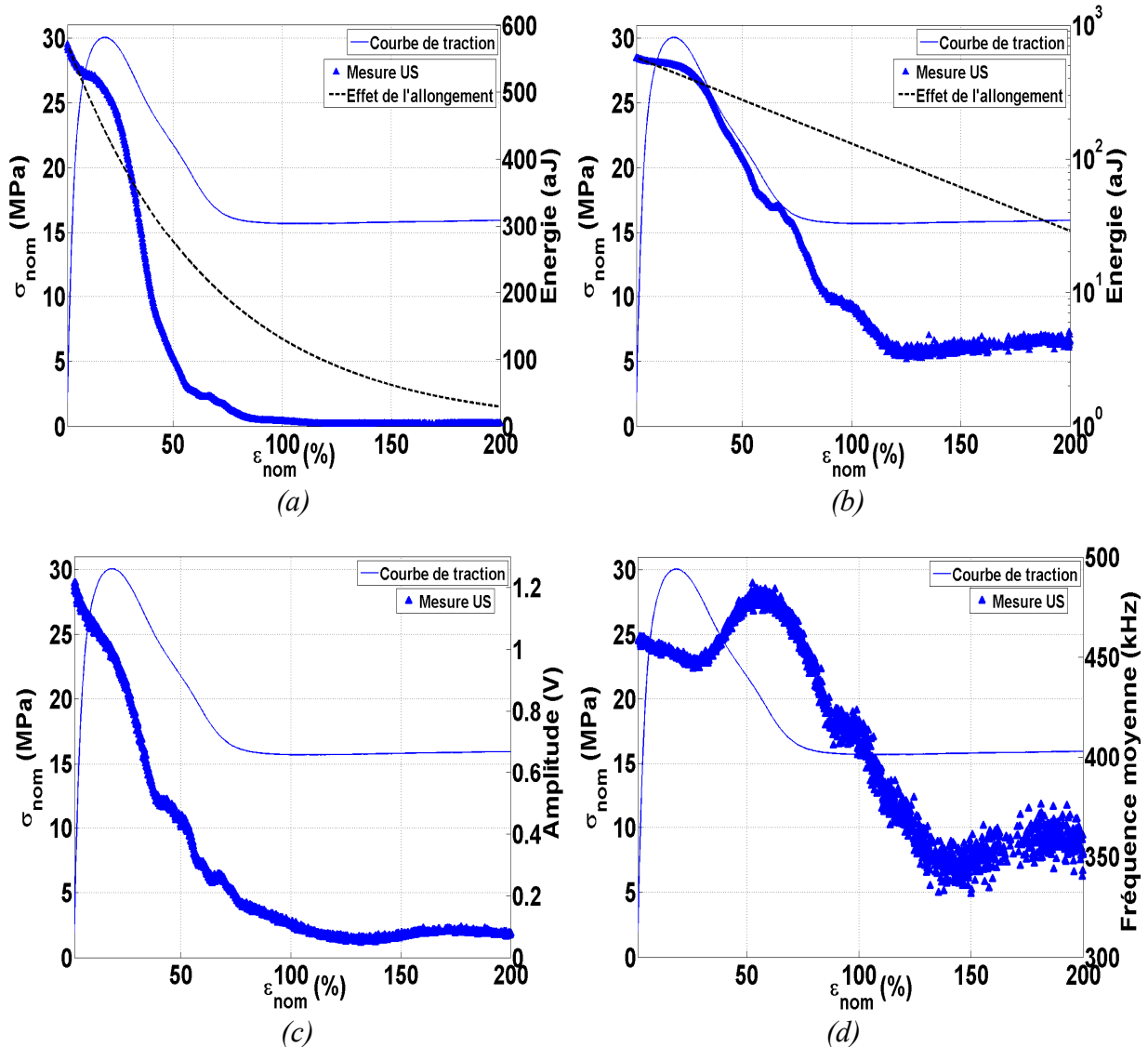


Figure.III.14. Evolution de (a) l'énergie en échelle linéaire, (b) l'énergie en échelle logarithmique la ligne pointillée noire (--) correspond à la décroissance de l'énergie sous l'effet de l'allongement de la distance entre les capteurs uniquement, (c) l'amplitude et (d) la fréquence moyenne des ondes guidées lors d'un essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} s^{-1}$ sur une éprouvette de PE D_{que}.

L'évolution de l'amplitude maximale des signaux US présente un comportement similaire à celui de l'énergie au cours de l'essai (Figure.III.14.c). La décroissance de l'amplitude décroît plus fortement dès le seuil de plasticité que dans le domaine élastique. Elle se stabilise autour 0,1 V vers 100 % de déformation.

La fréquence moyenne des signaux US est initialement de 460 kHz (Figure.III.14.d). Elle décroît d'environ 20 kHz lors de la déformation élastique du matériau. Nous observons une augmentation de la fréquence moyenne un peu après le seuil de plasticité. Cette évolution signifie que l'atténuation des basses fréquences devient plus élevée que celle des hautes fréquences. L'origine de ce comportement n'a pu être déterminée. Aux environs de 60 % de déformation, nous constatons que la fréquence moyenne diminue significativement passant de 480 à 350 kHz.

À partir de l'énergie, nous pouvons déterminer l'évolution de l'atténuation des ondes US au cours de l'essai. Les variations de l'atténuation en fonction de la déformation sont représentées sur la Figure.III.15. De manière surprenante, nous remarquons que l'atténuation croît d'environ 100 dB/m dans le domaine élastique. Cette augmentation n'est pas liée à la formation de mécanismes de plasticité et/ou d'endommagement au sein du matériau car dans le domaine élastique les mécanismes sont réversibles impliquant que la microstructure du matériau reste intacte. Nous pouvons attribuer cette augmentation à la manière de calculer l'atténuation. En effet, nous calculons l'atténuation à l'aide de l'Eq.II. 21 faisant intervenir la variation de la distance émetteur-récepteur au dénominateur. Or, dans le domaine élastique, cette variation est faible ce qui engendre une erreur sur l'estimation de l'atténuation et sa forte augmentation. Dans le domaine anélastique précédant le domaine plastique, nous remarquons une légère diminution de l'atténuation que nous pouvons attribuer à l'orientation des chaînes dans la direction de traction favorisant ainsi la propagation des ondes. Dès le seuil de plasticité, nous observons une importante augmentation de l'atténuation due à la formation de mécanismes de plasticité et d'endommagement d'une part et à la striction conduisant à une réduction hétérogène de la section de l'éprouvette d'autre part. Cette augmentation se poursuit jusqu'à 90 % de déformation, où l'atténuation atteint environ deux fois et demi celle du PE sain. Par la suite, une décroissance significative de l'atténuation est observée, passant de 1800 à 1250 dB/m, et qui pourrait être attribuée à l'orientation des chaînes de la phase amorphe dans l'axe de traction, comme cela a été suggéré par Yamaguchi *et al.* [YAM99].

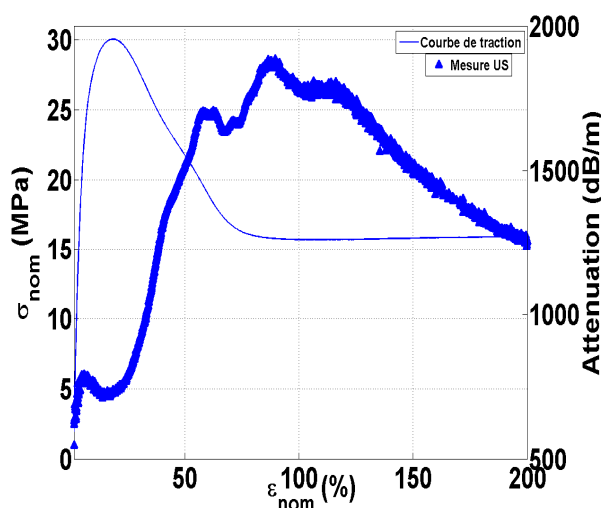


Figure.III.15. Evolution de l'atténuation en fonction de la déformation au cours d'un essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ sur une éprouvette de PE D_{que} .

3.2.2. Suivi des paramètres des ondes longitudinales

3.2.2.1. Essai de traction continu

Dans cette partie, nous suivons en continu l'évolution des paramètres US des ondes longitudinales lors d'un essai de traction.

L'enregistrement des signaux US étant effectué à l'aide d'un capteur d'EA, des signaux d'EA peuvent donc aussi être détectés au cours d'un essai de traction (Figure.III.16.a et b). Nous étudierons en détail les caractéristiques de ces signaux lors du prochain chapitre.

La courbe contrainte-déformation nominale et l'énergie des signaux US sont représentées sur la Figure.III.16.a. Dans le domaine élastique, nous constatons une augmentation de l'énergie

jusqu'à environ 15 % de déformation. Ce comportement est aussi observé sur l'amplitude maximale des signaux qui augmente d'environ 1,5 % jusqu'aux environs de 15 % de déformation (Figure.III.16.b). Une analyse quantitative montre que ces augmentations peuvent être attribuées à la réduction de l'épaisseur du matériau sous l'effet de Poisson dans le domaine élastique. En effet, comme le montre la Figure.III.16.c représentant l'évolution de l'amplitude d'un signal US en fonction de l'épaisseur parcourue dans un PE D_{que}, une augmentation de 1,5 % de l'amplitude signifie que l'épaisseur, initialement de 5,47 mm, s'est réduite d'environ 0,4 mm (épaisseur finale 5,06 mm) dans le domaine élastique au cours de l'essai. Cette diminution de l'épaisseur est proche de celle observée lors d'une mesure à l'aide d'un pied-à-coulisse qui était de 0,3 mm à 15 % de déformation, lors d'un essai de traction arrêté que nous présenterons ultérieurement (Figure.III.17).

En revanche, l'amplitude maximale ainsi que l'énergie des signaux US enregistrés s'effondre dès le seuil de plasticité, généralement considéré comme l'initiation de la déformation plastique des lamelles cristallines (Figure.III.16.a et b). Cet effondrement de l'énergie peut s'expliquer par une évolution de la structure du matériau. En effet, la destruction du réseau cristallin s'initie au niveau du seuil de plasticité ce qui engendre la percolation de petits blocs cristallins. L'effondrement du réseau conduit à une importante modification des propriétés élastiques du matériau, et par conséquent affecte la propagation des ondes.

Le comportement de l'amplitude et de l'énergie devient plus chaotique à partir d'environ 30 % de déformation. Nous remarquons qu'une augmentation de la valeur de ces paramètres est suivi ici d'une diminution jusqu'à la fin de l'essai. Cependant, ces variations ne sont pas liées à des évolutions des propriétés du matériau mais à celles du montage expérimental. En effet, la qualité des mesures US est fortement affectée par la formation de la striction sous les capteurs qui sont au contact avec le matériau. Malheureusement, au cours d'un essai de traction réalisé en continu, nous ne pouvons pas modifier efficacement le montage sans perturber les mesures US. Parmi ces évolutions du montage, nous pouvons citer :

- **le glissement des capteurs** : initialement, les capteurs sont positionnés parallèlement et face-à-face sur chaque face et au centre de l'éprouvette. Une bande de Téflon maintient fermement les capteurs sur la surface du matériau. Cependant, le glissement des capteurs peut différer selon la face du matériau, ce qui implique qu'ils ne restent pas face-à-face au cours d'un essai de traction et en particulier lors du passage de la striction sous les capteurs. Ainsi, la position des capteurs évoluent différemment sur chaque face ce qui influence les paramètres des signaux US enregistrés;
- **la désorientation des capteurs** : au cours d'un essai de traction, la déformation du matériau s'effectue en présence de la formation d'une striction qui se caractérise par une section plus faible au centre de l'éprouvette. Au niveau des cous de celle-ci, la surface du matériau est inclinée ce qui implique une désorientation des capteurs dont les faces ne sont plus parallèles;
- **l'évolution du couplage** : le glissement des capteurs le long de l'éprouvette engendre une évolution dans le contact entre le capteur et le matériau. Il en résulte que la qualité du couplage se dégrade progressivement ce qui influence les mesures US au cours de l'essai.

Un autre inconvénient du suivi *in situ* des paramètres des ondes longitudinales lors d'un essai de traction continu est que l'épaisseur du matériau au centre de l'éprouvette ne peut être déterminée sans affecter les mesures US. Ainsi, la vitesse et l'atténuation de ces ondes ne peuvent être déterminées.

Afin de s'affranchir de ces problèmes, nous avons choisi de suivre l'évolution des paramètres des ondes longitudinales lors d'essais de traction arrêtés. Lors de chaque arrêt, la position des capteurs peut être réajustée correctement sur les faces des éprouvettes. En outre, la mesure de l'épaisseur du matériau au niveau des capteurs est effectuée à l'aide d'un pied-à-coulisse. Par conséquent, lors de ce type d'essais, l'évolution des paramètres US peut être suivie plus efficacement.

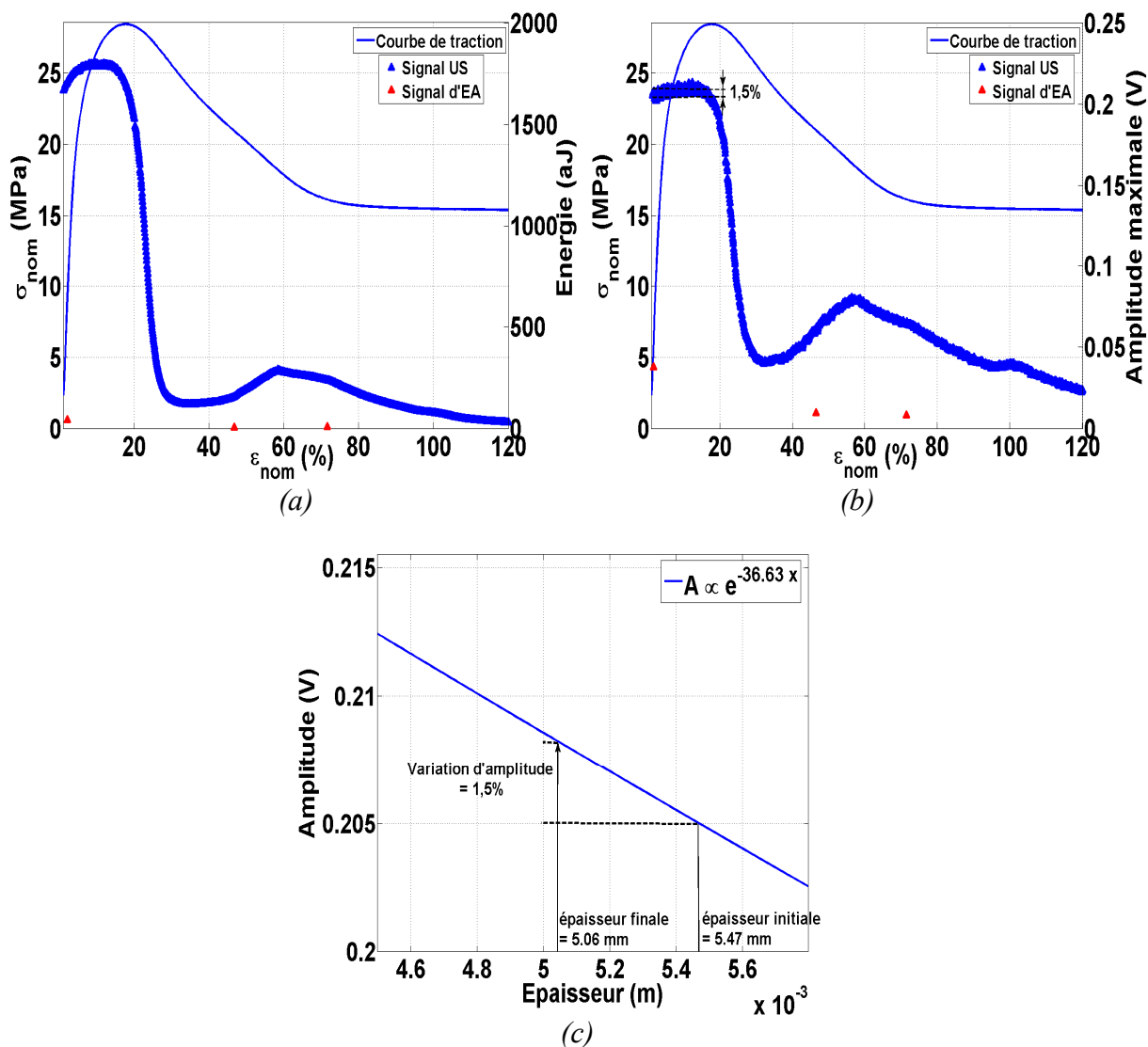


Figure.III.16. Evolution de (a) l'énergie et (b) de l'amplitude maximale des signaux US lors d'un essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ sur une éprouvette de PE D_{que} . (c) Variation d'amplitude d'un signal US en fonction de l'épaisseur traversée dans un PE D_{que} . Les lignes pointillées noires représentent une augmentation d'1,5 % de l'amplitude d'un signal en fonction de l'épaisseur du matériau.

3.2.2.2. Essai de traction arrêté

Tous les essais de traction arrêtés ont été réalisés à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. Les essais ont été arrêtés aux taux de déformation suivant : 15, 25, 50, 75, 100 % et ensuite par pas de 100 % jusqu'à la rupture du matériau. Indiquons que le seuil de plasticité des PE étudiés est situé autour de 15 % de déformation, ce qui signifie que la plupart des mesures sont effectuées dans le domaine de déformation plastique. La durée de chaque arrêt est de 2 min afin de repositionner face-à-face les capteurs au centre des éprouvettes, ainsi que de contrôler la

qualité du couplage et le serrage de la bande de Téflon. Les signaux US sont enregistrés uniquement après les réajustements du montage. Ainsi, contrairement à un essai de traction continu au cours duquel un grand nombre d'acquisitions est possible, dans le cas d'un essai de traction arrêté ce nombre est faible. Néanmoins, dans ce dernier cas, les variations des paramètres US sont moins perturbées par l'évolution du montage.

La courbe contrainte-déformation nominale et l'énergie des ondes longitudinales se propageant à travers un PE D_{que} au cours d'un essai de traction arrêté sont représentées sur la Figure.III.17.a. Nous constatons que l'énergie augmente dans le domaine élastique et s'effondre dès le seuil de plasticité avant d'atteindre un plateau autour de 200 % de déformation et jusqu'à la rupture du matériau. Le comportement de la durée du signal en fonction de la déformation est similaire à celui de l'énergie (Figure.III.17.b). En effet, la durée du signal est initialement d'environ 210 μ s, elle augmente dans le domaine élastique, puis décroît fortement dès le seuil de plasticité pour se stabiliser autour de 120 μ s aux environs de 100 % de déformation.

Pour ces deux paramètres, le plateau observé à partir de 200 % de déformation correspond au fait que la structure sphérolitique du centre de l'éprouvette s'est entièrement transformée en structure fibrillaire.

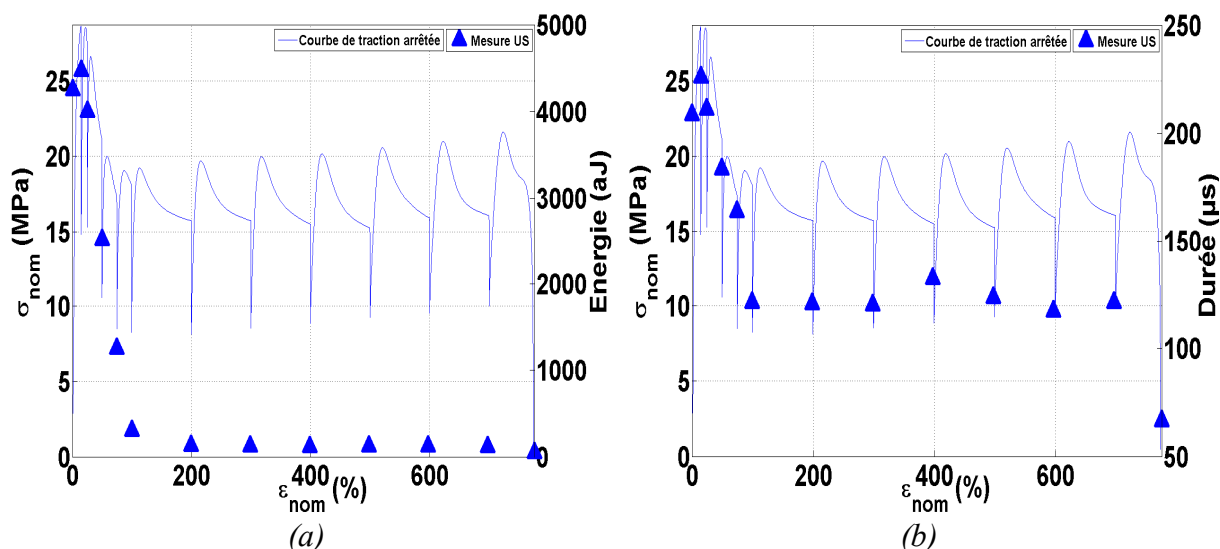


Figure.III.17. Evolution des paramètres US (a) l'énergie et (b) la durée des ondes longitudinales lors d'un essai de traction arrêté à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} s^{-1}$ sur une éprouvette de PE D_{que}.

Nous avons constaté que l'épaisseur du matériau diminue tout au long de l'essai, et plus particulièrement dès le seuil de plasticité à partir duquel s'initie la formation de la striction sur l'éprouvette (Figure.III.18.a).

À partir de l'épaisseur du matériau, nous pouvons déterminer l'évolution de la vitesse des ondes longitudinales au cours de la déformation du matériau (Figure.II.13 et Eq.II. 14). La vitesse décroît tout au long de l'essai; notons qu'elle diminue légèrement dans le domaine élastique (Figure.III.18.a). En revanche, la vitesse s'effondre à partir de 25 % de déformation, tandis qu'elle se stabilise autour de 900 m/s à partir de 200 % de déformation.

L'évolution du module longitudinal M en fonction de la déformation est représentée sur la Figure.III.18.b. Celui-ci est calculé en supposant que la densité du PE ne varie pas au cours de la

déformation (Eq.I. 6). Comme pour les autres paramètres, ce module subit une légère décroissance dans le domaine élastique avant une forte diminution dès le seuil de plasticité jusqu'à 200 % de déformation. Lorsque sa valeur se stabilise, le module est environ 4 fois plus faible que sa valeur initiale.

L'atténuation des ondes longitudinales est représentée en fonction de la déformation sur la Figure.III.18.c. Celle-ci augmente légèrement dans le domaine élastique tandis que, dès le seuil de plasticité elle augmente fortement signifiant la forte influence de l'état du réseau cristallin sur la propagation des ondes. A 200 % de déformation, l'atténuation est environ 5 fois plus élevée que celle du matériau sain.

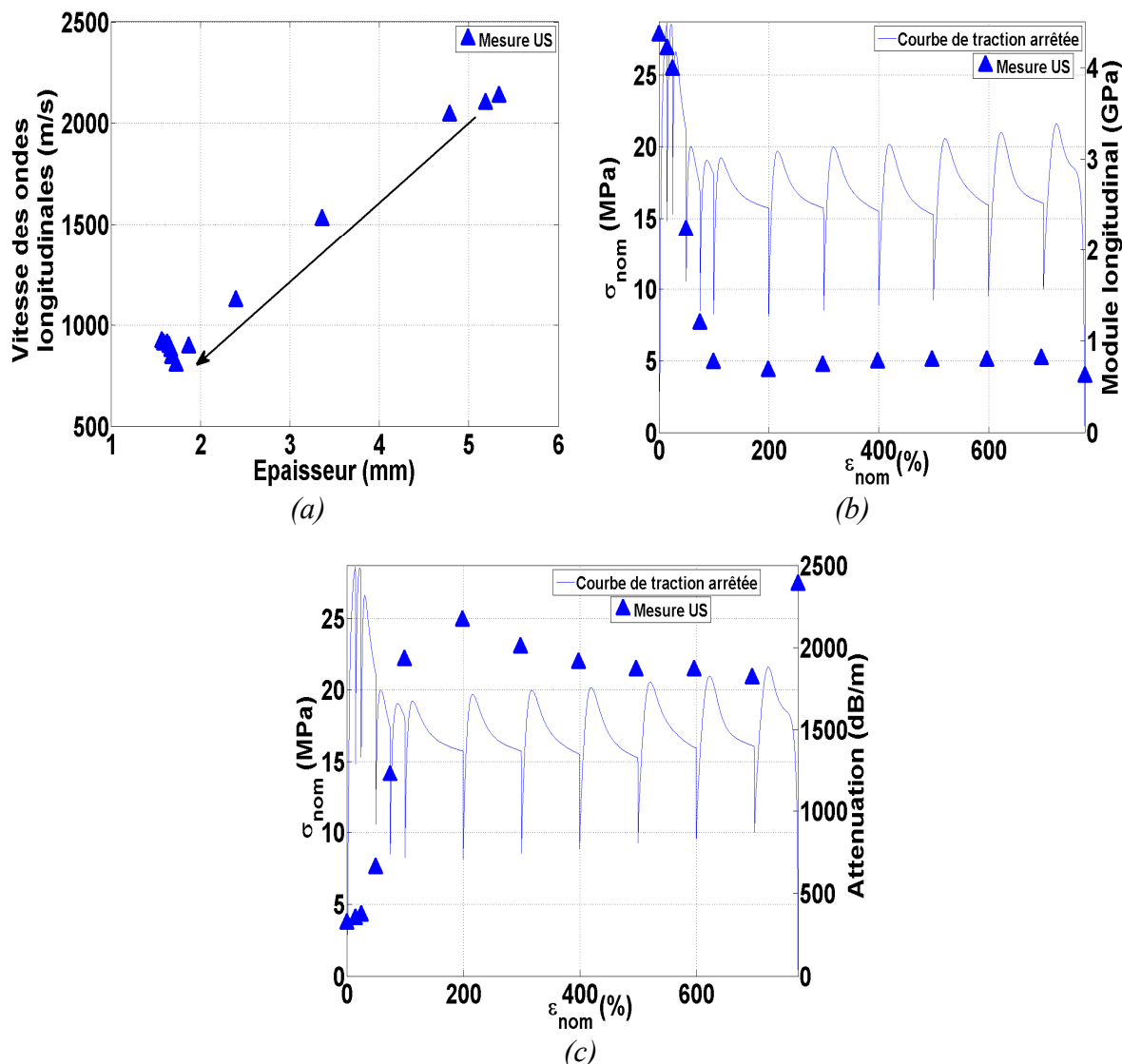


Figure.III.18. Evolution (a) de la vitesse des ondes longitudinales en fonction de l'épaisseur du matériau, (b) du module longitudinal M et (c) de l'atténuation des ondes longitudinales au cours d'un essai de traction arrêté réalisé à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} s^{-1}$ sur une éprouvette de PE D_{que} .

Dans cette partie, nous avons suivi l'évolution des paramètres US des ondes guidées et des ondes longitudinales au cours d'un essai de traction sur une éprouvette de PE D_{que}.

Dans le domaine élastique, nous avons notamment constaté que l'énergie des ondes guidées décroît sous l'effet de l'allongement de la distance entre les capteurs. En outre, l'énergie augmente légèrement sous l'effet de la réduction de l'épaisseur pour les ondes longitudinales. Pour les deux types d'ondes, l'énergie s'effondre dès le seuil de plasticité. Ce comportement engendre une augmentation significative de l'atténuation due, d'une part, à la destruction du réseau cristallin au sein du matériau et, d'autre part, à l'évolution géométrique de l'éprouvette causée par la formation de la striction. Aux plus grandes déformations, une stabilisation de l'énergie est constatée. L'atténuation des ondes guidées diminue significativement, probablement due à l'orientation des chaînes de la phase amorphe.

3.3. INFLUENCE GEOMETRIQUE DE LA STRICTION ET DES MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT SUR LA PROPAGATION DES ONDES US

Dans cette partie, nous étudierons l'influence géométrique de la formation de la striction sur l'atténuation des ondes guidées. Nous allons également analyser l'influence du taux de cristallinité, de la cavitation et de l'orientation des chaînes de la phase amorphe sur la propagation des ondes longitudinales et des ondes guidées se propageant perpendiculairement et dans la direction de traction.

3.3.1. Ondes guidées

3.3.1.1. Influence géométrique de la striction

Lors d'un essai de traction, une striction se forme au centre de l'éprouvette. Elle se caractérise géométriquement par une réduction hétérogène de la section le long de la zone utile. Nous avons vu précédemment qu'une réduction de l'épaisseur de l'éprouvette engendre une forte augmentation de l'atténuation des ondes guidées. Ainsi, nous pouvons penser que la formation d'une striction affecte également la propagation des ondes guidées.

Afin de vérifier l'influence géométrique de la striction sur l'énergie des signaux US, nous avons usiné des éprouvettes dont le centre présente des formes similaires à l'évolution de la striction observée lors d'un essai de traction, à la différence qu'au sein de celle-ci aucun mécanisme de plasticité et d'endommagement n'a eu lieu. Les mesures ont été réalisées pour des déformations géométriques correspondant à 50, 75, 100 et 200 %. Les signaux US générés sont identiques à ceux utilisés lors des essais (signaux carrés).

La Figure.III.19 représente l'évolution de l'énergie des signaux US en fonction d'un taux de déformation correspondant aux dimensions de la striction usinée sur des éprouvettes saines d'un des PE étudiés, le PE A_{que}. Sur cette figure, la courbe de traction permet de montrer par rapport à un vrai essai de traction, les stades de déformations géométriques de l'éprouvette (striction) auxquels nous avons effectué nos mesures. Nous remarquons que l'énergie des signaux décroît significativement avec la réduction hétérogène de la section de l'éprouvette. En effet, nous observons une décroissance de l'énergie passant d'environ 9000 à 20 aJ entre 0 et 100 % de déformation uniquement liée à la géométrie de la striction. Indiquons qu'aucun signal n'a pu être détecté dans le cas de l'éprouvette usinée à 200 % de déformation. L'augmentation de

l'atténuation observée est donc d'environ 2200 dB/m à 100 % de déformation. Par conséquent comme attendu, la déformation géométrique des éprouvettes uniquement liée à la formation de la striction a une influence importante sur la propagation des ondes guidées.

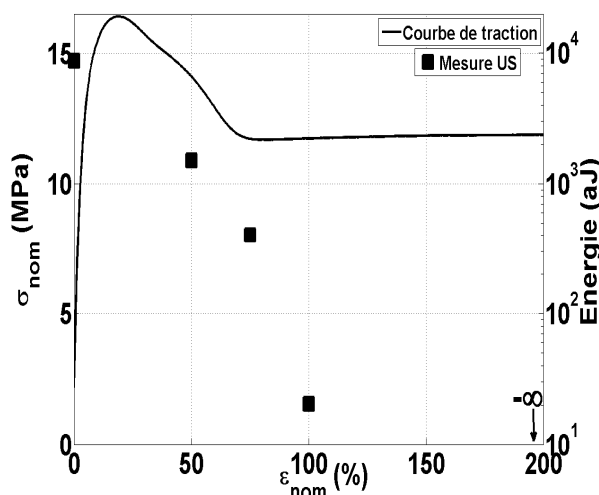


Figure.III.19. Evolution de l'énergie des ondes guidées en fonction de la déformation correspondant à la formation de la striction sur des éprouvettes de PE A_{que} non déformées. La courbe de traction permet de replacer les mesures US par rapport à un vrai essai de traction.

3.3.1.2. Influence de l'orientation des chaînes

Au cours d'un essai de traction, les chaînes macromoléculaires de la phase amorphe s'orientent progressivement dans la direction de traction. Cette orientation conduit à une évolution de l'anisotropie du matériau. Dans cette partie, nous entreprenons de montrer l'influence de ce mécanisme sur la propagation des ondes guidées.

Hisekorn [HIR86] puis Ahmed *et al.* [AHM91] ont montré que, dans des aciers polycristallins, l'atténuation des ondes est plus faible lorsque les plans cristallographiques des grains sont orientés dans la direction de propagation des ondes. Ce comportement s'explique par le caractère anisotrope des cristaux impliquant que leurs constantes élastiques dépendent de la direction.

En s'orientant dans l'axe de traction, les propriétés élastiques de la phase amorphe des PE vont tendre vers celles du cristal. Par conséquent, nous pouvons penser que l'orientation des chaînes macromoléculaires de la phase amorphe dans la direction de traction favorise la propagation des ondes.

Yamaguchi *et al.* [YAM99] ont suggéré que la diminution de l'atténuation des ondes guidées, après le seuil de plasticité au cours d'un essai de traction sur un PP, résulterait de l'orientation des chaînes amorphes dans la direction de traction. Cependant, ces auteurs n'ont pas mis en évidence que ce mécanisme est bien à l'origine de la décroissance de l'atténuation.

Par conséquent, nous avons cherché à montrer cet effet en comparant l'énergie des signaux enregistrés au cours d'un essai de traction (mesures *in situ*) et l'énergie de signaux acquis après déformation du matériau jusqu'aux différents taux de déformation souhaités suivi d'un relâchement de la contrainte (mesures *ex situ*) engendrant un repliement des chaînes sur elles-mêmes. Ces mesures *ex situ* ont été réalisées sur des éprouvettes de PE B_{que} qui ont été étirées à

25, 50, 75, 100 et 200 % de déformation. Les mesures *ex situ* ont été effectuées environ 48 heures après les essais de déformation.

La comparaison de l'énergie des signaux US pour des mesures *in situ* et *ex situ* est représentée en fonction de la déformation d'un PE B_{que} sur la Figure.III.20. Nous remarquons que l'énergie des signaux enregistrés lors des mesures *in situ*, c'est-à-dire au cours d'un essai de traction, est toujours supérieure à celle des signaux acquis lors des mesures *ex situ* (après déformation du matériau et repliement des chaînes sur elles-mêmes). Ce comportement s'explique par le dépliement et l'orientation progressive des chaînes amorphes dans l'axe de traction, ce qui entraîne une augmentation de l'anisotropie du PE au cours de l'essai. Cette orientation conduit à ce qu'une partie de ces chaînes peut cristalliser montrant ainsi que les propriétés élastiques de la phase amorphe tendent vers celles du cristal. Par conséquent, la perte plus faible d'énergie des signaux enregistrés lors des mesures *in situ* par rapport aux mesures *ex situ* provient du fait que l'atténuation intrinsèque de la phase amorphe diminue avec l'orientation des chaînes et tend vers celle du cristal. L'atténuation du cristal est plus faible que celle de l'amorphe, par conséquent ce mécanisme engendre une décroissance de l'atténuation du milieu au cours d'un essai de traction. La propagation des ondes guidées se trouve donc favorisée par l'évolution de l'anisotropie du matériau dans la direction de traction.

Ainsi, ce résultat confirme l'hypothèse suggérée par Yamaguchi *et al.* [YAM99].

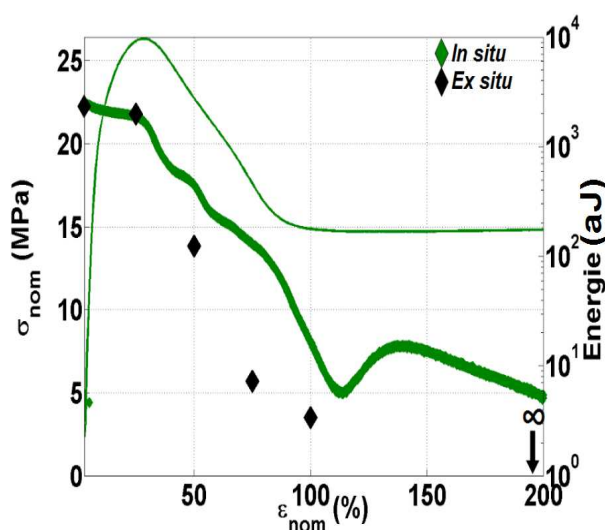


Figure.III.20. Evolution de l'énergie des ondes guidées au cours d'un essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ et lors de mesures *ex situ* sur des éprouvettes de PE B_{que} .

3.3.2. Ondes longitudinales

3.3.2.1. Influence du taux de cristallinité

L'influence du taux de cristallinité sur les courbes de traction arrêtées des PE est représentée sur la Figure.III.21.a. Nous constatons que la contrainte correspondant au seuil de plasticité augmente avec le taux de cristallinité, et que celle-ci est généralement située entre les arrêts à 15 et 25 % de déformation dans ce type d'essais (Figure.III.21.b). La position du seuil de plasticité est donc assez peu impactée par les arrêts. Par la suite pour des raisons de lisibilité graphiques, les mesures US seront représentées sans ces courbes de traction.

Au cours de nos essais, nous avons remarqué que l'énergie présente la même évolution pour l'ensemble des PE (Figure.III.17) :

- l'énergie augmente dans le domaine élastique;
- une importante diminution de l'énergie est observée dès le seuil de plasticité du fait de l'effondrement du réseau cristallin conduisant à la formation d'une structure fibrillaire;
- la valeur de l'énergie se stabilise à partir de 200 % de déformation montrant que la structure sphérolitique initiale s'est entièrement transformée en structure fibrillaire au niveau du capteur.

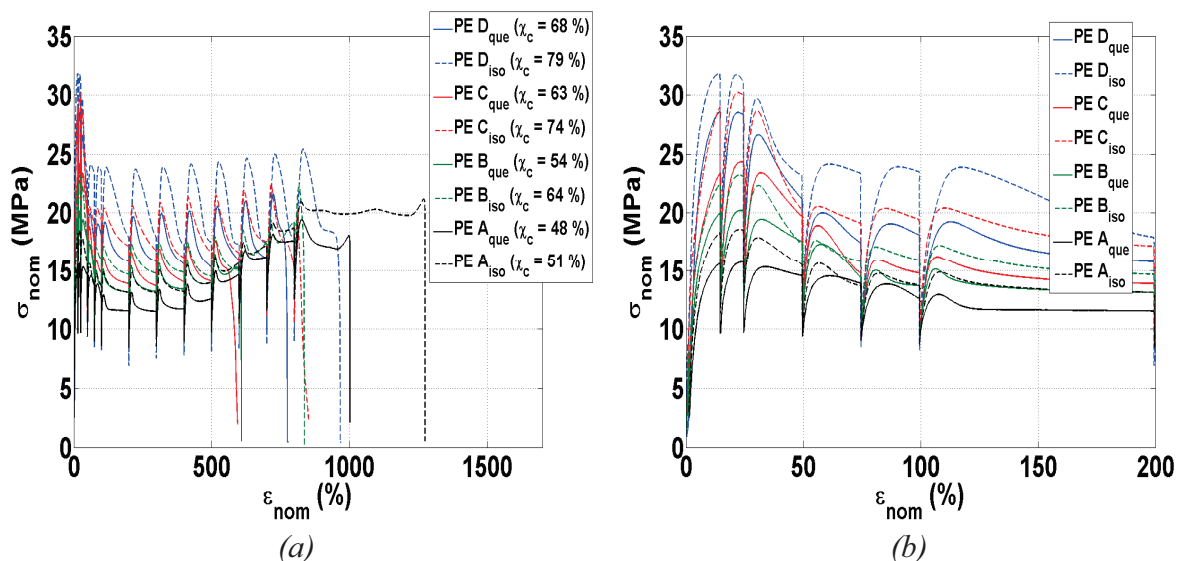


Figure.III.21. Courbes de traction arrêtees des différents PE étudiés (a) jusqu'à la rupture du matériau et (b) zoom entre 0 et 200 % de déformation. Les essais ont été réalisés à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} s^{-1}$.

De plus, la perte d'énergie des signaux est plus importante pour les PE les plus cristallins. Ce comportement est clairement visible sur l'évolution de l'atténuation au cours des essais, comme le montre la Figure.III.22.a.

Dans le domaine élastique, nous constatons que l'atténuation augmente légèrement. Une forte augmentation de celle-ci est observée dès le seuil de plasticité et elle se stabilise à partir de 200 % de déformation. À ce dernier taux de déformation (200 %), nous remarquons que l'atténuation des PE les moins cristallins est typiquement comprise entre 1000 et 1700 dB/m tandis que celle-ci est entre 2100 et 2800 dB/m pour les PE les plus cristallins. Par conséquent, à la fin de l'essai, l'atténuation des ondes longitudinales est plus faible dans les PE les moins cristallins. Cette tendance est contraire à celle observée au début de l'essai où l'atténuation est plus élevée pour les PE moins cristallins.

Nous faisons le même constat sur l'évolution de la vitesse des ondes longitudinales en fonction de la déformation pour l'ensemble des PE (Figure.III.22.b). En effet, la vitesse diminue légèrement dans le domaine élastique, un effondrement de la valeur de celle-ci est observé dès le seuil de plasticité et jusqu'à 200 % de déformation où la vitesse des ondes se stabilise. À 200 % de déformation pour les PE les plus cristallins, la vitesse des ondes longitudinales a été divisée par presque 3 au cours de l'essai, tandis que celle des PE les moins cristallins l'a été par 2

environ. Ainsi, à la fin de l'essai la vitesse des ondes longitudinales est plus élevée dans les PE les moins cristallins, contrairement à ce qui est observé à l'état non déformé.

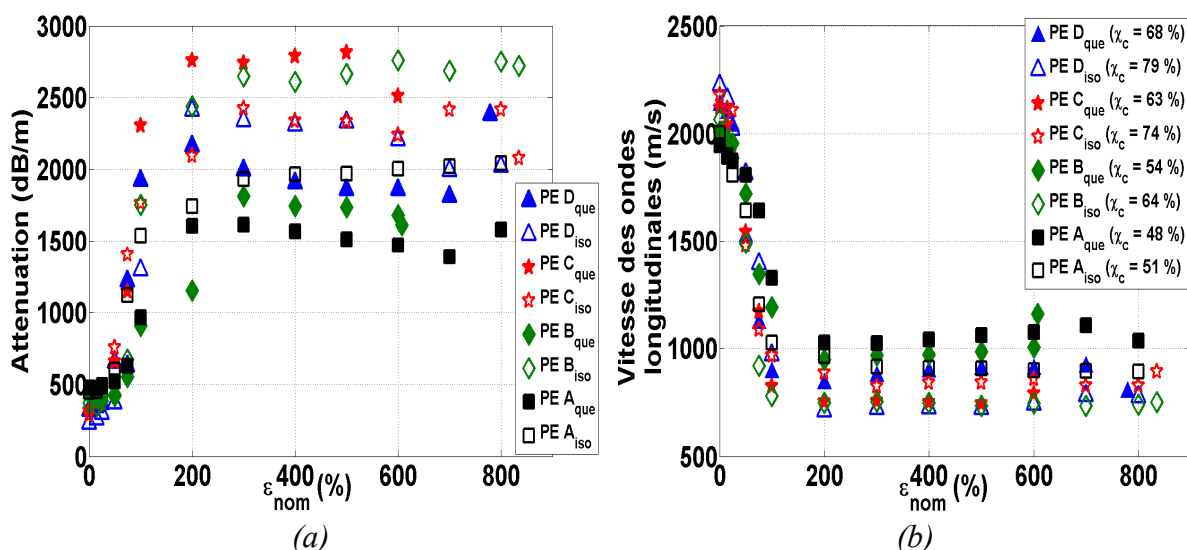


Figure.III.22. Evolution (a) de l'atténuation et (b) de la vitesse des ondes longitudinales en fonction de la déformation lors d'essais de traction arrêts réalisés à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} s^{-1}$ pour l'ensemble des PE étudiés.

3.3.2.2. Influence de la cavitation

Comme nous l'avons vu précédemment à partir de 200 % de déformation, nous n'observons plus d'évolution des paramètres US au cours de la déformation. Ce comportement s'explique par le fait que la structure sphérolitique initiale du matériau s'est entièrement transformée en structure fibrillaire au niveau des capteurs (typiquement situés au centre de l'éprouvette). Dans cette partie, nous montrerons l'influence de la cavitation sur l'atténuation et la vitesse des ondes longitudinales dans les PE.

Plusieurs études ont montré l'effet de la porosité sur l'atténuation et la vitesse des ondes US dans divers matériaux [CHE09, JEO95, TAV92]. Les auteurs ont établi que la présence de micro-cavités au sein des matériaux engendre une importante augmentation de l'atténuation ainsi qu'une diminution de la vitesse des ondes. En outre, la variation de ces paramètres croît avec le pourcentage de vide.

Par conséquent, nous pouvons penser que la formation de micro-cavités impacte la propagation des ondes US dans les PE au cours des essais.

La variation de l'atténuation des ondes longitudinales pour l'ensemble des PE, entre leur valeur à 200 % de déformation et leur valeur à l'état initial, est représentée en fonction du taux de cristallinité sur la Figure.III.23.a. Nous remarquons que l'évolution de l'atténuation dépend bien du taux de cristallinité. En outre, deux groupes de PE peuvent être identifiés. Les PE les moins cristallins présentent une évolution de l'atténuation plus faible que celle des PE les plus cristallins (environ 1000 dB/m contre 2000 dB/m). Cette différence pourrait être due à la formation ou non de micro-cavités au sein des matériaux au cours des essais. En effet, les PE les moins cristallins ne cavitent pas (PE A_{que} et PE B_{que}) ou peu (PE A_{iso}), tandis que les plus cristallins se déforment avec la formation d'une quantité plus importante de micro-vides.

La formation de micro-vides semble également provoquer une diminution plus importante de la vitesse des ondes longitudinales dans les PE les plus cristallins. En effet, comme le montre la Figure.III.23.b, la diminution de la vitesse des ondes est autour de 1000 m/s pour les PE les moins cristallins tandis qu'elle est située aux environs de 1400 m/s pour les plus cristallins.

Cette décroissance plus importante de la vitesse semble signifier une diminution plus importante des propriétés élastiques des PE se déformant en présence de micro-cavités que celles des PE qui se déforment en l'absence de cavitation. En effet, les modules d'Young E et longitudinal M sont proportionnels au produit de la masse volumique par le carré de la vitesse des ondes longitudinales (Eq.I. 6). Outre une diminution des vitesses plus importantes, la présence de micro-vides au sein des PE les plus cristallins engendre une diminution significative de leur masse volumique. Par conséquent, il semble que les modules élastiques des PE se déformant en présence de micro-cavités subissent une décroissance plus importante que ceux des PE qui se déforment en l'absence de cavitation.

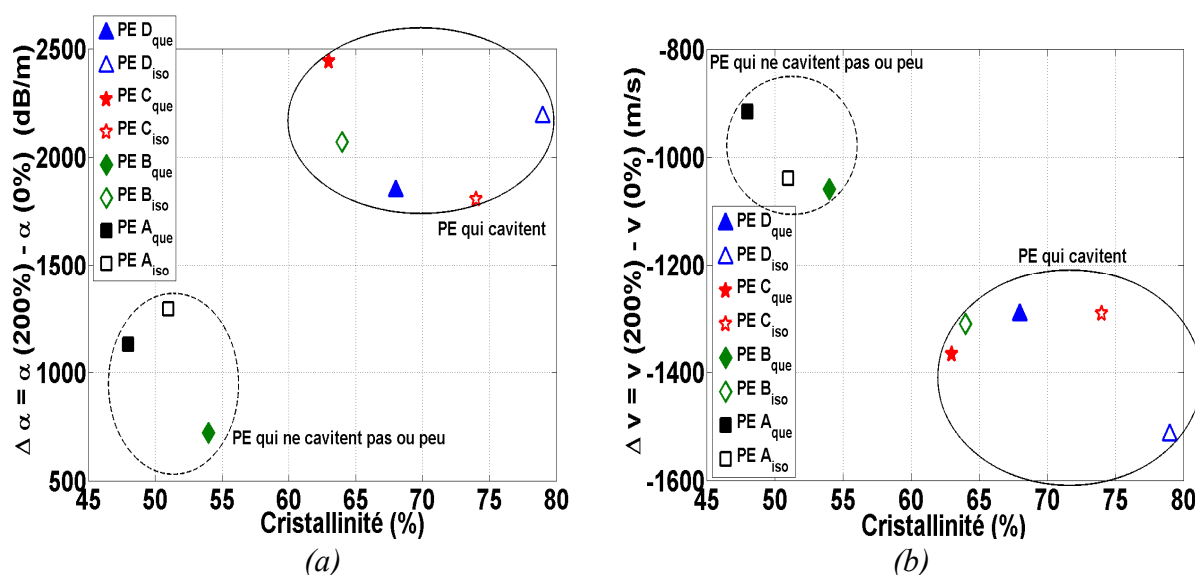


Figure.III.23. Variation (a) de l'atténuation et (b) de la vitesse des ondes longitudinales entre la valeur à 200 % de déformation et la valeur à l'état initial, en fonction du taux de cristallinité.

3.3.2.3. Influence de l'orientation des chaînes

Dans la partie 3.3.1.2, nous avons montré que l'orientation des chaînes de la phase amorphe entraîne une diminution de l'atténuation des ondes guidées se propageant dans la direction de traction. Nous entreprenons ici de montrer l'effet de ce mécanisme sur la propagation des ondes longitudinales se propageant perpendiculairement à l'orientation des chaînes.

Dans le cas des ondes longitudinales, l'influence de l'orientation des chaînes a été réalisée en comparant l'énergie des signaux US avant et après rupture des PE. En effet, juste avant la rupture du matériau les chaînes sont orientées tandis qu'après la rupture (relâchant la contrainte) de celui-ci, les chaînes se replient de nouveau sur elles-mêmes.

La Figure.III.24 représente la différence d'énergie des signaux US enregistrés après et avant la rupture des différents PE. Nous constatons que cette différence est négative pour l'ensemble des PE, montrant que l'énergie des signaux est plus élevée avant la rupture, c'est-à-dire lorsque les

chaînes sont orientées, qu'après rupture, c'est-à-dire lorsque les chaînes sont repliées. Nous prouvons donc que l'orientation des chaînes favorise également la propagation des ondes transitant perpendiculairement à la direction de traction.

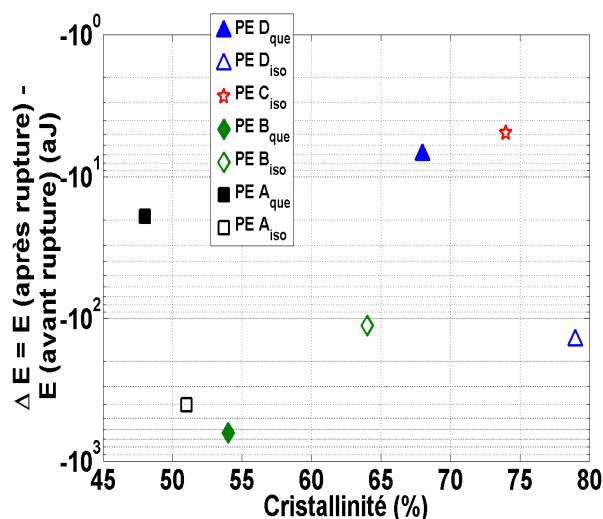


Figure.III.24. Variation d'énergie des signaux US entre l'énergie après et avant la rupture des PE en fonction de leur taux de cristallinité.

Dans cette partie, nous avons montré l'évolution des paramètres US des ondes guidées se propageant le long de la zone utile des éprouvettes, et des ondes longitudinales qui transitent dans le matériau suivant son épaisseur au cours d'essais de traction. Nous avons observé une importante modification des paramètres des ondes dès le seuil de plasticité que nous pouvons attribuer à l'évolution de la géométrie des éprouvettes causée par la formation d'une striction d'une part, et à l'apparition de mécanismes de plasticité et d'endommagement au sein des matériaux d'autre part. Une augmentation significative de l'atténuation est constatée lors de la déformation géométrique seule des éprouvettes de traction sous l'effet de la striction. Nous avons remarqué que la fragmentation des lamelles cristallines en blocs cristallins entraîne une forte hausse de l'atténuation. De même, la présence de micro-vides au sein des PE engendre une élévation de l'atténuation et une diminution plus importante de la vitesse des ondes longitudinales. L'orientation progressive des chaînes macromoléculaires dans l'axe de traction conduit à une décroissance de l'atténuation intrinsèque de la phase amorphe ce qui implique que ce mécanisme tend à faire diminuer l'atténuation US au cours des essais.

Cependant, nos mesures ne révèlent pas de modifications des paramètres US causées par la transformation martensitique, qui apparaît dans nos PE avant le seuil de plasticité. Ceci pourrait s'expliquer par le fait que les propriétés élastiques de la maille orthorhombique initiale du PE sain et la maille monoclinique du PE résultante de la transformation doivent probablement être peu différentes.

4. COMPORTEMENT DES ONDES US DANS D'AUTRES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS

Nous avons entrepris d'étudier la propagation des ondes US au sein d'autres polymères semi-cristallins que le PE afin de vérifier si les comportements observés précédemment peuvent être généralisés. Par conséquent, nous avons utilisé la technique de contrôle par ondes US pour suivre la déformation plastique et l'endommagement d'un PP et d'un PVDF au cours d'essais de traction. Le taux de cristallinité du PP et du PVDF est respectivement de 53 et 47 %. A

l'exception de l'épaisseur des éprouvettes de PVDF qui est de 3 mm, les dimensions des éprouvettes de traction de ces matériaux sont identiques à celles des PE.

4.1. POLYPROPYLENE

Comme pour les PE, l'énergie d'ondes guidées, composées d'un seul cycle de sinusoïde de fréquence 500 kHz et transitant le long de la zone utile de l'éprouvette, décroît exponentiellement lorsque la distance de propagation augmente (Figure.III.25.a). A cette fréquence, l'atténuation des ondes guidées dans le PP sain est de 820 dB/m. Par conséquent, nous vérifions que l'atténuation US dans ce polymère semi-cristallin est également élevée d'une part, et qu'elle est similaire à celle des PE présentant un taux de cristallinité proche d'autre part. Nous faisons le même constat pour l'atténuation des ondes longitudinales qui est de 513 dB/m à la fréquence de 300 kHz. La vitesse des ondes longitudinales et transversales est respectivement de 2345 et 983 m/s, ce qui est supérieur à la vitesse des ondes de volume des PE de taux de cristallinité proche montrant que le module d'Young du PP est plus élevé que celui du PE.

La Figure.III.25.b représente l'évolution de l'énergie des ondes guidées ayant transitées le long de la zone utile d'une éprouvette de PP en fonction de la déformation nominale, au cours d'un essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $8,3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Nous constatons que l'énergie des signaux US décroît légèrement dans le domaine élastique, tandis qu'elle s'effondre dès le seuil de plasticité. Cette forte diminution de l'énergie, qui passe d'environ 500 à 9 aJ, apparaît avec la formation de mécanismes de plasticité et d'endommagement au sein du matériau, en particulier avec la destruction du réseau cristallin, et avec la formation de la striction. A plus grande déformation, nous observons une faible décroissance de l'énergie que nous pouvons attribuer à l'orientation des chaînes de la phase amorphe.

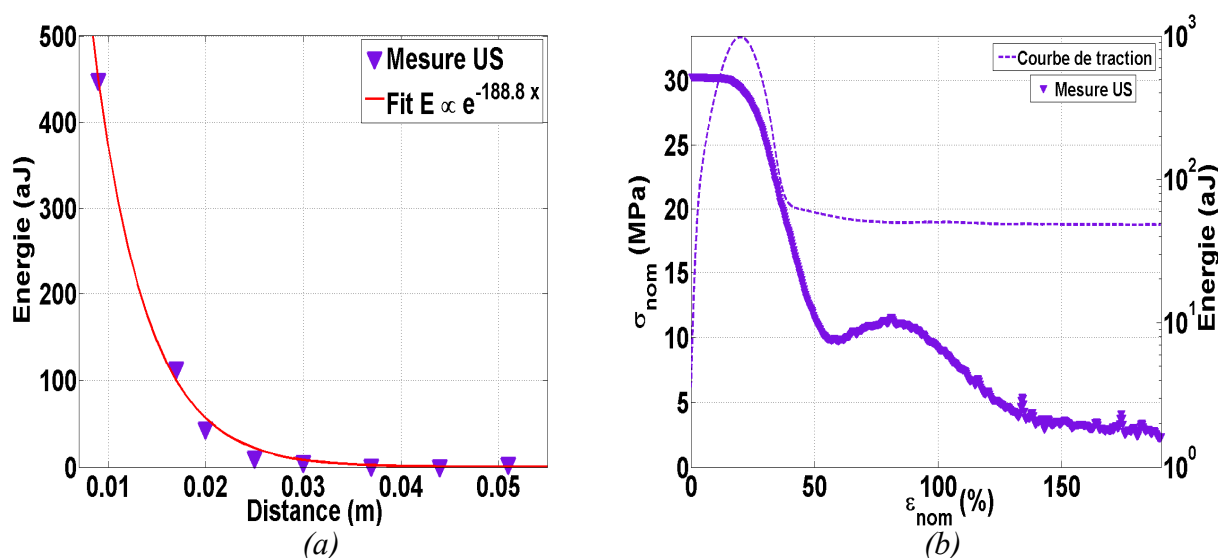


Figure.III.25. Energie des ondes guidées (a) en fonction de la distance de propagation à la surface d'une éprouvette de PP et (b) au cours d'un essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $8,3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ sur une éprouvette de PP.

Nous avons également suivi la déformation plastique et l'endommagement du PP perpendiculairement à la direction de traction à l'aide d'ondes longitudinales, lors d'un essai de traction arrêté à la vitesse de déformation de $8,3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. L'évolution de la vitesse et de l'atténuation des ondes longitudinales est représentée en fonction de la déformation sur les Figure.III.26.a et b. Dans le domaine élastique, nous observons une faible décroissance de la vitesse et une petite augmentation de l'atténuation. Dès le seuil de plasticité, une forte modification de ces paramètres est constatée avec l'effondrement de la vitesse, passant de 2250 à

1000 m/s, liée à une importante augmentation de l'atténuation qui est multipliée par 5 entre 25 et 100 % de déformation. En fin d'essai, la vitesse et l'atténuation des ondes évoluent peu.

Par conséquent, nous remarquons que les comportements constatés sur les PE sont également observés sur le PP ce qui montre bien que les mécanismes de plasticité et d'endommagement affectent fortement la propagation des ondes US.

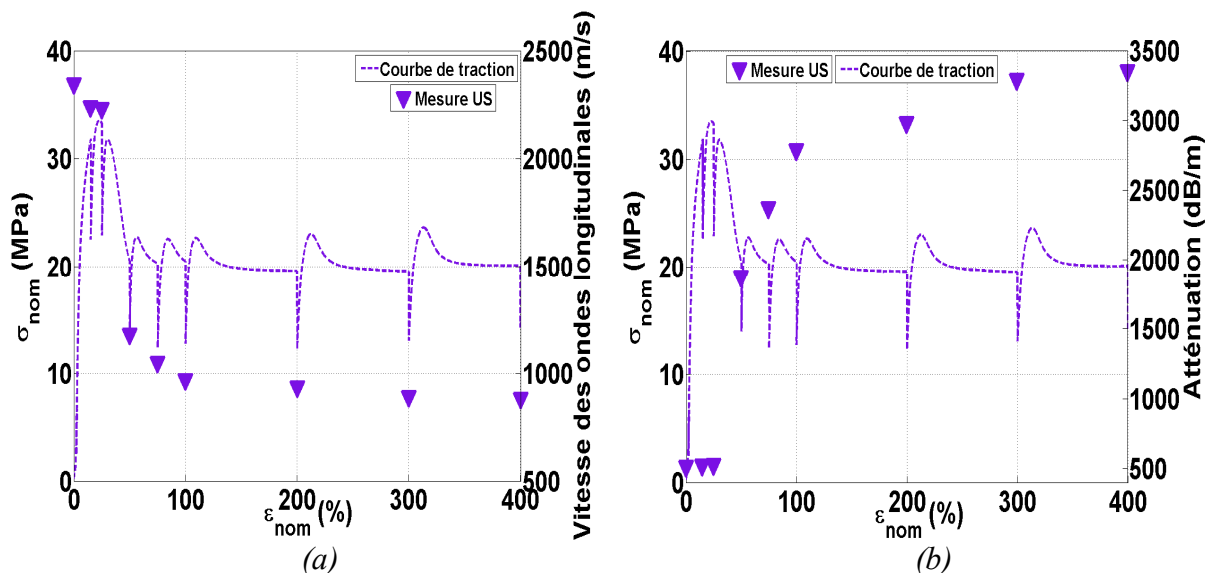


Figure.III.26. Evolution de (a) la vitesse et (b) l'atténuation des ondes longitudinales au cours d'un essai de traction arrêté réalisé à la vitesse de déformation de $8,3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ sur une éprouvette de PP.

4.2. POLYFLUORURE DE VINYLIDENE

La décroissance de l'énergie des ondes guidées de fréquence 500 kHz en fonction de la distance de propagation à la surface d'une éprouvette de PVDF est représentée sur la Figure.III.27.a. Pour ces ondes, nous remarquons que l'atténuation dans le PVDF est de 1588 dB/m, ce qui est bien plus élevée que l'atténuation dans un PE de cristallinité proche, le PE A_{que} (48 %), qui est de 790 dB/m. Cette différence s'explique par le fait que l'épaisseur des éprouvettes de PVDF est de 3 mm tandis que celle des PE est d'environ 6 mm. En effet, nous avons montré (partie 2.3.2.2) qu'une réduction de l'épaisseur d'environ 3 mm engendre un doublement de l'atténuation des ondes guidées. En ce qui concerne l'atténuation des ondes longitudinales, elle est de 1058 dB/m à la fréquence de 300 kHz dans le PVDF, également plus élevée que l'atténuation du PE A_{que}. La vitesse des ondes longitudinales et transversales est respectivement de 1845 et 799 m/s.

L'évolution de l'énergie des ondes guidées qui se sont propagées le long de la zone utile d'une éprouvette de PVDF au cours d'un essai de traction effectué à la vitesse de déformation de $8,4 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ est représentée sur la Figure.III.27.b. Nous remarquons qu'une décroissance de l'énergie des signaux US apparaît dès le début de l'essai, et que l'énergie décroît un peu plus au niveau du seuil de plasticité. À partir d'environ 70 % de déformation, nous constatons une stabilisation de l'énergie des signaux due à l'orientation des chaînes de la phase amorphe dans la direction de traction.

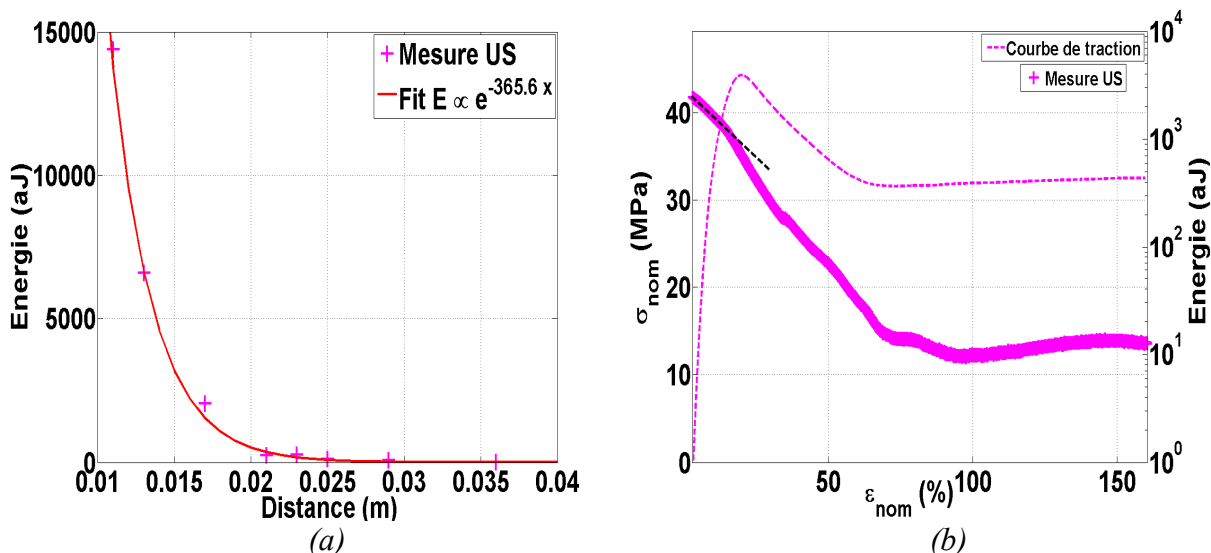


Figure.III.27. Energie des ondes guidées (a) en fonction de la distance de propagation à la surface d'une éprouvette de PVDF et (b) au cours d'un essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $8,4 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ sur une éprouvette de PVDF.

Le suivi de la déformation plastique et l'endommagement du PVDF a aussi été réalisé perpendiculairement à l'axe de traction par des ondes longitudinales, lors d'un essai de traction arrêté à la vitesse de déformation de $8,4 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. L'évolution de la vitesse et de l'atténuation des ondes longitudinales sont représentées en fonction de la déformation sur les Figure.III.28.a et b. Dans le domaine élastique, nous remarquons que la vitesse des ondes décroît très légèrement alors que l'atténuation augmente peu. En revanche, une forte décroissance de la vitesse et une importante augmentation de l'atténuation (qui est doublée) sont observées dès le seuil de plasticité. À la fin de l'essai, nous remarquons une faible évolution de ces paramètres.

Nous pouvons conclure que les observations réalisées sur les PE et le PP peuvent être généralisées au PVDF.

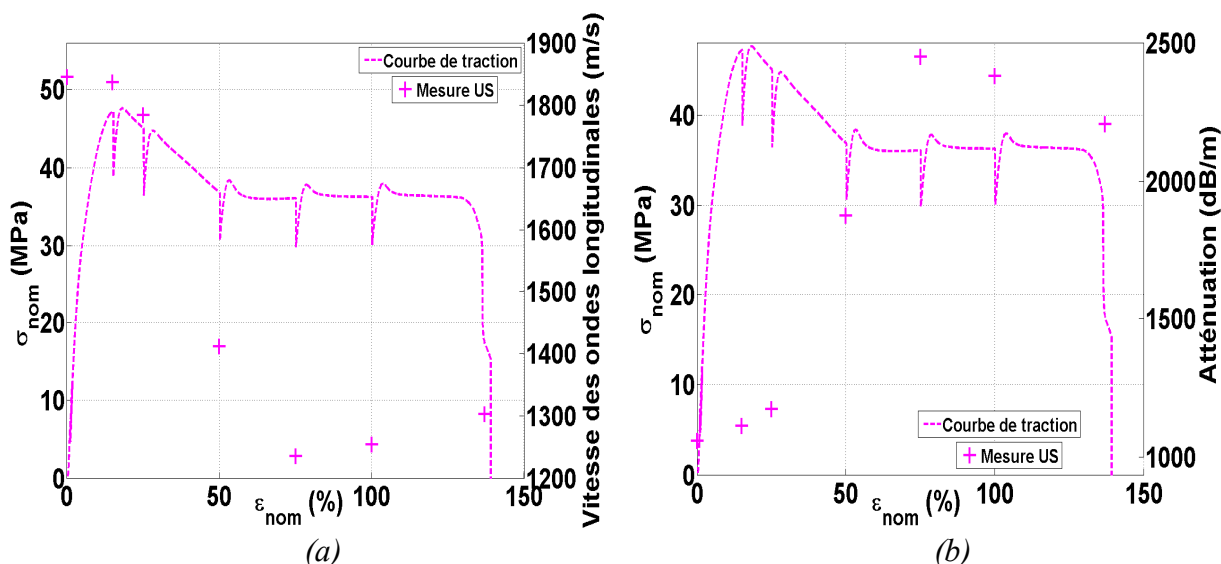


Figure.III.28. Evolution de (a) la vitesse et (b) l'atténuation des ondes longitudinales au cours d'un essai de traction arrêté réalisé à la vitesse de déformation de $8,4 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ sur une éprouvette de PVDF.

5. CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons employé la technique de contrôle US afin d'acquérir une meilleure compréhension de l'initiation de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins. Pour cela, nous avons étudié la propagation de différentes ondes US dans des PE présentant des taux de cristallinités variés, d'un PP et d'un PVDF. Nous avons choisi d'utiliser les ondes guidées et les ondes de volume afin de caractériser les propriétés de ces matériaux et d'étudier les mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissant en leur sein lors d'essais de traction.

Dans un premier temps, nous avons cherché à mieux comprendre la propagation des ondes US dans les éprouvettes de traction de PE à l'état non déformé. Nous avons remarqué qu'une augmentation de la distance de propagation affecte significativement l'ensemble des paramètres des ondes guidées. Une décroissance exponentielle de l'énergie et de l'amplitude des signaux est observée avec la distance de propagation, ce qui nous a permis de vérifier que l'atténuation US est élevée dans les PE. Nous avons mis en évidence que l'atténuation croît avec la fréquence et qu'un changement du type d'ondes guidées se propageant dans l'éprouvette apparaît aux environs de 600 kHz. Nous avons également constaté qu'une diminution de l'épaisseur des éprouvettes engendre une augmentation significative de l'atténuation. De plus, l'atténuation des ondes guidées et des ondes de volume diminue lorsque le taux de cristallinité des PE augmente. La vitesse des ondes de volume augmente avec le taux de cristallinité. Enfin, nous avons vérifié que l'atténuation des ondes longitudinales est plus faible que celle des ondes transversales, ce qui est la conséquence de la faible viscosité des PE limitant les mouvements de cisaillement.

Dans un second temps, nous avons étudié la propagation des ondes guidées et des ondes longitudinales lors d'essais de traction en continu et arrêtés. Les ondes guidées ont été employées pour étudier la déformation plastique et l'endommagement des PE dans la direction de traction, tandis que les ondes longitudinales ont été utilisées perpendiculairement à l'axe de traction. Dans le domaine élastique, l'énergie des ondes guidées diminue sous l'effet de l'allongement de la distance entre les capteurs émetteur et récepteur, alors que l'énergie des ondes longitudinales augmente légèrement sous l'effet de la réduction de l'épaisseur. L'atténuation et la vitesse des ondes longitudinales évoluent peu dans ce domaine. Dans le domaine de déformation plastique, la propagation des ondes est affectée par l'apparition des mécanismes de plasticité et d'endommagement ainsi que par la forte évolution géométrique de l'éprouvette causée par la formation de la striction. Nous avons en effet montré que la formation de la striction conduit à une évolution de la géométrie des éprouvettes, menant à une augmentation importante de l'atténuation des ondes guidées. Dès le seuil de plasticité, nous avons constaté un effondrement de l'énergie (et une augmentation significative de l'atténuation) des différentes ondes que nous pouvons attribuer à la fragmentation des lamelles cristallines engendrant la destruction du réseau cristallin. La vitesse des ondes longitudinales diminue également dès le début de la déformation plastique des PE. Les PE les plus cristallins présentent une variation d'atténuation et de vitesse plus importante que celle des PE les moins cristallins. Ce comportement s'explique par la formation de micro-cavités qui conduirait à une diminution plus importante des propriétés élastiques des matériaux se déformant en présence de cavitation. Nous avons également montré l'influence de l'orientation des chaînes de la phase amorphe sur la propagation des ondes. Effectivement, ce mécanisme a pour effet de diminuer l'atténuation due à l'évolution de l'anisotropie du matériau favorisant la propagation des ondes.

Dans la dernière partie de ce chapitre, nous avons également étudié la propagation des ondes US dans un PP et un PVDF. Nous avons vérifié que l'atténuation US dans ces polymères semi-cristallins est élevée. Au cours d'essais de traction, l'évolution des paramètres des ondes guidées et des ondes longitudinales est similaire à celle observée sur les PE. En particulier, nous avons remarqué un effondrement de l'énergie et de la vitesse dès le seuil de plasticité confirmant l'influence de l'état du réseau cristallin sur la propagation des ondes.

Nos investigations nous ont permis de mieux comprendre le comportement des ondes US dans les polymères semi-cristallins à l'état non déformé et au cours d'essais de traction. En particulier, nous comprenons mieux l'influence (i) des différents mécanismes de plasticité et d'endommagement, et (ii) de l'évolution de la géométrie des éprouvettes de traction sur la propagation des ondes US. Par conséquent, nous appréhendons mieux la possibilité de détecter des signaux d'EA provenant de mécanismes apparaissant au sein des matériaux étudiés et, de gamme de fréquences comprises dans le domaine US dans lequel a été mené l'étude de ce chapitre.

CHAPITRE IV

SUIVI DE LA DEFORMATION PLASTIQUE ET DE L'ENDOMMAGEMENT DE POLYMERES SEMI-CRISTALLINS PAR LA TECHNIQUE D'EMISSION ACOUSTIQUE

1. INTRODUCTION.....	116
2. ÉTUDES PRELIMINAIRES	118
2.1. CONDITIONS D'ACQUISITION D'UN SIGNAL D'EA	118
2.2. IDENTIFICATION PREALABLE DES SOURCES POSSIBLES D'EA	120
2.3. OBSERVATIONS PRELIMINAIRES DE L'ACTIVITE ACOUSTIQUE AU COURS D'UN ESSAI DE TRACTION.....	121
2.4. PRE-CYCLES	123
2.5. IDENTIFICATION DE L'ORIGINE DES SIGNAUX	124
2.5.1. <i>Éprouvette haltère</i>	124
2.5.2. « <i>Anti-éprouvette</i> »	125
2.5.3. <i>Comparaison de l'activité acoustique</i>	125
3. ANALYSE DU COMPORTEMENT DE L'ACTIVITE ACOUSTIQUE D'UN DES POLYMERES ETUDIES, LE PE D_{QUE}.....	127
3.1. RAPPELS SUR LES MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT	127
3.1.1. <i>Cavitation</i>	128
3.1.2. <i>Cisaillement et fragmentation des lamelles cristallines</i>	128
3.1.3. <i>Transformation martensitique</i>	129
3.1.4. <i>Rupture des fibrilles</i>	129
3.2. EFFET DE LA VITESSE DE DEFORMATION	129
3.3. EVOLUTION DU NOMBRE CUMULE DE SIGNAUX D'EA AU COURS DES ESSAIS DE TRACTION.....	131
3.4. ANALYSE DES PARAMETRES DES SIGNAUX D'EA	133
4. EFFET DE LA MICROSTRUCTURE SUR L'ACTIVITE ACOUSTIQUE	135
4.1. INFLUENCE DU TAUX DE CRISTALLINITE	135
4.2. ANALYSE DES PARAMETRES DES SIGNAUX D'EA	137
4.2.1. <i>Durée et fréquence moyenne</i>	137
4.2.2. <i>Énergie</i>	138
4.3. LOCALISATION	142
4.4. INITIATION DE L'ACTIVITE ACOUSTIQUE.....	145
5. ACTIVITE ACOUSTIQUE D'AUTRES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS	148
5.1. POLYPROPYLENE.....	148
5.2. POLYFLUORURE DE VINYLIDENE	149
6. CONCLUSION.....	150

1. INTRODUCTION

La technique d'émission acoustique (EA) permet la détection d'ondes transitoires provenant des mécanismes de plasticité, d'endommagement et d'événements associés à la rupture de matériaux sous contrainte. Toutefois, cette technique a rarement été utilisée pour étudier la déformation plastique et l'endommagement de polymères semi-cristallins car, comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, une forte atténuation ultrasonore (US) caractérise ces matériaux. Néanmoins, les quelques études d'EA à notre disposition indiquent qu'une faible activité acoustique est observée lorsque ces matériaux sont sollicités en traction. Jusqu'à présent, la localisation de signaux d'EA n'a pas encore été possible, ce qui signifie que l'origine physique des signaux n'est pas encore clairement établie. En effet, diverses sources d'EA contribuent à la détection de signaux au cours des essais. Par conséquent, lorsque la localisation de signaux n'est pas possible, il est nécessaire de différencier la signature acoustique des signaux provenant des mécanismes de plasticité et d'endommagement du matériau, des signaux provenant éventuellement de sources parasites. Par conséquent, nous chercherons à confirmer que les signaux d'EA détectés proviennent effectivement des mécanismes de plasticité et d'endommagement du matériau. De plus, les influences des vitesses de sollicitations et de la microstructure sur l'activité acoustique demeurent inconnues pour ces matériaux. De même, aucune identification des sources n'a été réalisée jusqu'à présent.

Dans ce chapitre, nous allons utiliser la technique d'EA afin d'observer et de caractériser les prémices de la plasticité et de l'endommagement de plusieurs PE possédant des paramètres microstructuraux variés, d'un PP et d'un PVDF.

Tout d'abord, une étude préliminaire est proposée où les conditions nécessaires à la détection de signaux d'EA provenant d'un PE ainsi que les différentes sources parasites d'EA possibles lors d'essais de traction sont présentées. Nous exposerons, ensuite, la méthodologie mise en place pour différencier les signaux parasites de ceux provenant de la déformation plastique et de l'endommagement des PE.

Dans une seconde partie, nous analyserons l'activité acoustique d'un des PE étudiés, le PE D_{que} (68 %) au sein duquel des micro-cavités se forment après le seuil de plasticité, afin de déterminer les conditions expérimentales les plus favorables à l'acquisition de signaux d'EA et leur localisation. Nous étudierons également le comportement des paramètres d'EA au cours des essais.

Dans la troisième partie, nous étudierons l'effet de la microstructure de différents PE sur l'activité acoustique ainsi que sur les caractéristiques des signaux. Nous tenterons d'associer les signaux aux mécanismes de plasticité et d'endommagement. Enfin, nous caractériserons l'initiation de l'activité acoustique.

Finalement, nous étudierons l'activité acoustique d'un PP et d'un PVDF lors d'essais de traction afin de vérifier les comportements observés et confirmer les modèles proposés à partir des données d'EA des PE.

Pour terminer, une conclusion exposera les principaux résultats de ce chapitre.

2. ÉTUDES PRELIMINAIRES

2.1. CONDITIONS D'ACQUISITION D'UN SIGNAL D'EA

De l'énergie acoustique est libérée lorsque des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissent au sein d'un matériau sollicité mécaniquement [SCR85]. Cette énergie se propage dans le matériau sous la forme d'ondes US jusqu'aux capteurs d'EA qui traduisent les vibrations de la surface en un signal électrique : on parle alors de signal d'EA. Cependant, l'acquisition de ce signal est soumise à plusieurs conditions.

Tout d'abord, aucune information concernant l'énergie ou le contenu fréquentiel des sources d'EA n'est *à priori* connue. Dans ce cas, il semble judicieux d'utiliser des capteurs dits « large bande » pour la détection des signaux d'EA. Cependant, ce type de capteur possède une sensibilité relativement faible ce qui limite l'acquisition de signaux. Ainsi, un compromis est habituellement fait entre la largeur de la bande et la sensibilité du capteur. Par conséquent, des capteurs résonants sont couramment utilisés car ils possèdent une sensibilité élevée essentiellement centrée autour de leur fréquence de résonance. Classiquement, la gamme de fréquences correspondant aux mesures d'EA est située dans le domaine US compris entre 20 kHz et 1,2 MHz. Par conséquent, tous les signaux dont le contenu fréquentiel est en dehors de cette gamme de mesure, ne peuvent pas être enregistrés avec les systèmes d'EA standards.

Dans le cadre de nos travaux, nous étudions l'EA discrète pour laquelle un signal est enregistré uniquement si son amplitude maximale dépasse le seuil d'acquisition fixé pour éviter la détection de signaux provenant du bruit ambiant. Pour cela, il est donc nécessaire que le signal possède une amplitude maximale suffisamment importante pour être enregistré par les capteurs. Compte-tenu de la forte atténuation des ondes US dans les PE, la détection d'un signal issu d'une source d'EA isolée est fortement improbable si elle a lieu à une trop grande distance des capteurs et/ou si son énergie est trop faible. Ainsi, un signal détecté serait plus probablement issu d'une multitude de sources d'EA dont les amplitudes peuvent partiellement s'additionner. Lorsque deux ondes se rencontrent, leur amplitude peut s'additionner à condition que leur différence de trajet dans le milieu soit inférieure à la longueur de cohérence L_{coh} : on parle alors d'interférences. La longueur de cohérence peut être calculée à partir de la vitesse v des ondes considérées et de leur étendue spectrale Δf [SCR90] :

$$L_{coh} = \frac{v}{\Delta f} \quad (Eq.IV. 1)$$

Il existe deux types d'interférences :

- les **interférences constructives** : lors de leur rencontre, l'amplitude des ondes s'ajoutent si elles sont en phase (Figure.IV.1.a). Ceci est le cas, lorsque leur différence de trajet est égale à un nombre entier de la longueur d'onde;
- les **interférences destructives** : lors de leur rencontre, l'amplitude des ondes, qui sont en opposition de phase, s'annule (Figure.IV.1.b). C'est le cas, lorsque leur différence de trajet est égale à une demi-longueur d'onde.

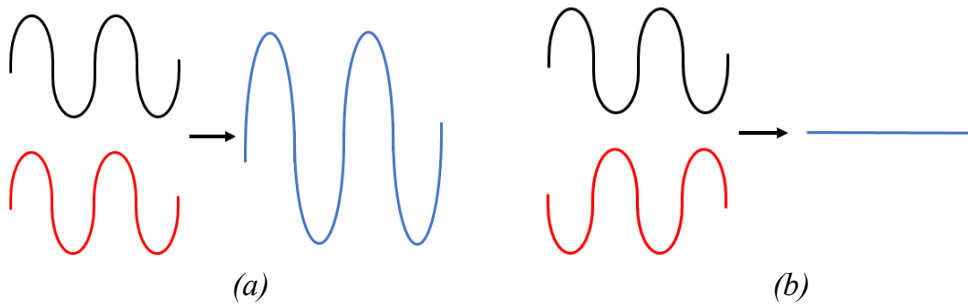


Figure.IV.1. Schémas d'interférences (a) constructives et (b) destructives.

Ainsi, lorsqu'une multitude de sources d'EA apparaît en avalanche sur une distance inférieure à L_{coh} , l'ensemble des ondes générées va subir à la fois des interférences constructives et destructives. Ainsi, ces effets peuvent engendrer localement une onde résultante d'amplitude élevée.

Après s'être propagées dans le milieu, les ondes se réfléchissent partiellement à l'interface entre le matériau et la face avant du capteur (la semelle) qui est au contact avec le matériau par l'intermédiaire d'une fine couche de couplant. Une partie de l'énergie des ondes reçue au niveau du capteur, qui est une fraction de l'énergie des sources d'EA, est donc transmise au capteur tandis que l'autre partie est réfléchi. La proportion d'énergie transmise (et réfléchi) dépend de la différence d'impédance acoustique entre le PE et la semelle fabriquée en Alumine. L'impédance acoustique Z d'un milieu est le produit de la masse volumique ρ et la vitesse des ondes v .

$$Z = \rho v \quad (Eq.IV. 2)$$

La masse volumique de l'alumine est 3970 kg.m^3 , tandis que celle du PE est d'environ 950 kg.m^3 . La vitesse des ondes longitudinales et transversales dans l'alumine sont respectivement de 10315 et 7729 m/s , alors que celles dans les PE sont d'environ 2100 et 1100 m/s . Ainsi, l'impédance de l'alumine et des PE est $40,9$ et 2 MRayl pour les ondes longitudinales, tandis qu'elle est de $30,1$ et $1,1 \text{ MRayl}$ pour les ondes transversales.

Les proportions d'énergie transmises T et réfléchies R peuvent être déterminées à partir des relations suivantes :

$$R = \left(\frac{Z_1 - Z_2}{Z_1 + Z_2} \right)^2 \quad (Eq.IV. 3)$$

$$T = \frac{4Z_1 Z_2}{(Z_1 + Z_2)^2} \quad (Eq.IV. 4)$$

Pour des ondes longitudinales, la part d'énergie réfléchi à l'interface entre un PE et la face avant du capteur est d'environ 82% tandis qu'environ 18% seulement de l'énergie de l'onde est transmise au capteur. Pour des ondes transversales, ces parts sont d'environ 87% et 13% respectivement. La majorité de l'énergie des ondes incidentes est donc réfléchi à l'interface avec le capteur.

Le type de couplant utilisé ainsi que la qualité du couplage entre les capteurs et le matériau peuvent aussi avoir une influence importante sur l'énergie du signal détecté. En effet, un couplant plutôt visqueux à l'avantage de laisser se propager tous les types d'ondes, à l'inverse d'un couplant assez fluide dans lequel les ondes de cisaillement ne se propagent pas (module de cisaillement très faible). Mais, un couplant peu visqueux présente l'avantage d'être plus facilement applicable à la surface du matériau à étudier ce qui favorise une meilleure qualité du couplage en limitant la perte d'énergie transmise aux capteurs à cause du montage. Ainsi, un couplant fréquemment utilisé est la graisse à vide peu visqueuse mais facile à déposer sur tous les matériaux en très fine couche afin de minimiser son influence sur les mesures.

Ainsi, si l'amplitude maximale de l'onde reste supérieure au seuil d'acquisition, après sa propagation dans le PE et la perte d'énergie à l'interface du capteur, alors le signal d'EA sera enregistré par le capteur. Parmi les signaux enregistrés, seuls ceux ayant une énergie suffisamment élevée peuvent atteindre les deux capteurs et donc permettre la localisation de la source leur ayant donné naissance. La méthode de localisation linéaire permet de déterminer la position des sources uniquement situées entre les deux capteurs. Par conséquent, nous distinguons deux catégories: les signaux non localisés et les signaux localisés, aussi appelés événements d'EA.

2.2. IDENTIFICATION PREALABLE DES SOURCES POSSIBLES D'EA

De nombreux mécanismes peuvent être à l'origine de la libération d'énergie acoustique lors d'un essai de traction effectué sur les matériaux testés. Quatre types de sources peuvent être identifiés, comme le montre la Figure.IV.2 :

- **Micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement :** nous cherchons à caractériser les signaux originaires des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissant au sein du matériau lors des essais. L'éventuelle localisation de ces signaux sur l'éprouvette est un moyen de vérification que ceux-ci proviennent bien du matériau;
- **Glissements des capteurs sur la surface du matériau :** ce type de source traduit les glissements entre les capteurs d'EA et la surface du matériau sous contrainte. Plusieurs types de fixation des capteurs sur la surface sont possibles. Le collage du capteur sur le PE serait un moyen efficace mais cela nous est impossible à la fois car les PE sont des matériaux très difficiles à coller et, le cas échéant, le risque serait de détecter des signaux issus de la décohésion de la colle lors des essais. Ainsi, nous avons choisi de fixer les capteurs avec de la graisse à vide et de les maintenir fermement à l'aide de bandes de Téflon. Cependant, en cas de diminution trop importante de la section du matériau au cours de l'essai, le serrage se trouvera dégradé et des glissements pourront intervenir;
- **Glissements des têtes des éprouvettes dans les mors de serrage :** ces phénomènes de glissement sont particulièrement présents dès la mise en charge de l'éprouvette, ce qui occasionne l'enregistrement de signaux lors de la déformation purement élastique, au cours de laquelle aucun événement microstructural irréversible n'est attendu dans le matériau;

- **Bruits extérieurs :** des signaux parasites d'EA, provenant de bruits extérieurs au système, peuvent être détectés. Ces sources peuvent être associées par exemple aux vibrations mécaniques de la machine d'essais de traction ou à des bruits extérieurs quelconques. En principe, ce problème est évité par la présence d'un seuil d'acquisition sur l'amplitude du signal.

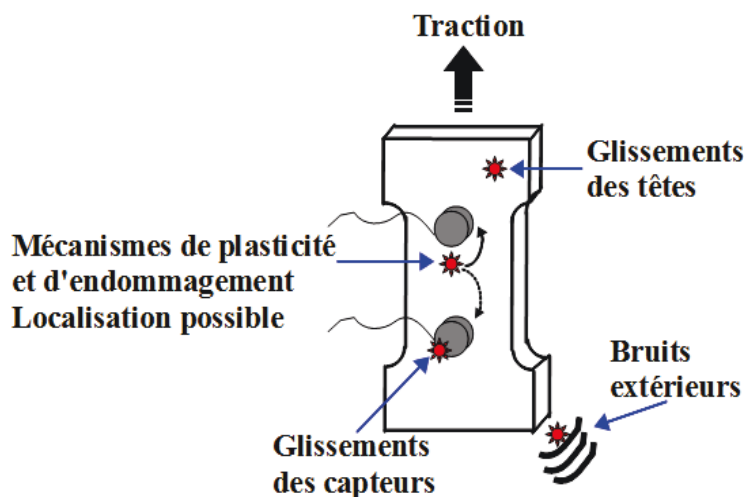


Figure.IV.2. Schéma des différentes sources d'EA possibles au cours d'un essai de traction.

Néanmoins, l'atténuation des ondes US dans les PE étant élevée, si l'énergie acoustique libérée par les micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement est faible et/ou si la source est située à une distance trop grande d'au moins un des capteurs, il y a *a priori* une forte probabilité qu'aucun signal ne soit détecté par les deux capteurs à la fois, voire même que les signaux ne soient pas détectés du tout. Par conséquent, l'enregistrement d'événements d'EA semble très improbable, ce qui rend difficile la détermination de l'origine des signaux détectés.

2.3. OBSERVATIONS DE L'ACTIVITE ACOUSTIQUE AU COURS D'UN ESSAI DE TRACTION

Une observation préliminaire de l'activité acoustique a été réalisée lors d'un essai de traction uniaxiale à la vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ sur une éprouvette de PE C_{que} dont le taux de cristallinité est de 63 %. La Figure.IV.3.a montre la courbe contrainte/déformation nominale sur laquelle sont directement représentés les signaux d'EA détectés jusqu'à la rupture du matériau. Nous constatons que seulement une trentaine de signaux d'EA est enregistrée avant la rupture. Ces observations corroborent celles effectuées par les auteurs dans la littérature scientifique qui ont montré que l'activité acoustique collectée au cours d'essais de traction pour ce type de matériaux est très faible [BET82, BOH00, KRO02, QIA83]. Pour comparaison, le nombre de signaux d'EA enregistrés lors d'un essai de traction uniaxiale sur des matériaux composites à matrice polymères peut être de l'ordre de plusieurs milliers avant rupture [HUG02].

En outre, l'énergie des signaux d'EA apparaissant avant la rupture du matériau est typiquement comprise entre 1 et 100 aJ (Figure.IV.3.b). Ces très faibles valeurs d'énergie sont en partie liées à la forte atténuation des ondes US dans les PE et montrent la difficulté de détecter des signaux provenant de la déformation plastique et l'endommagement de ces matériaux par la technique d'EA.

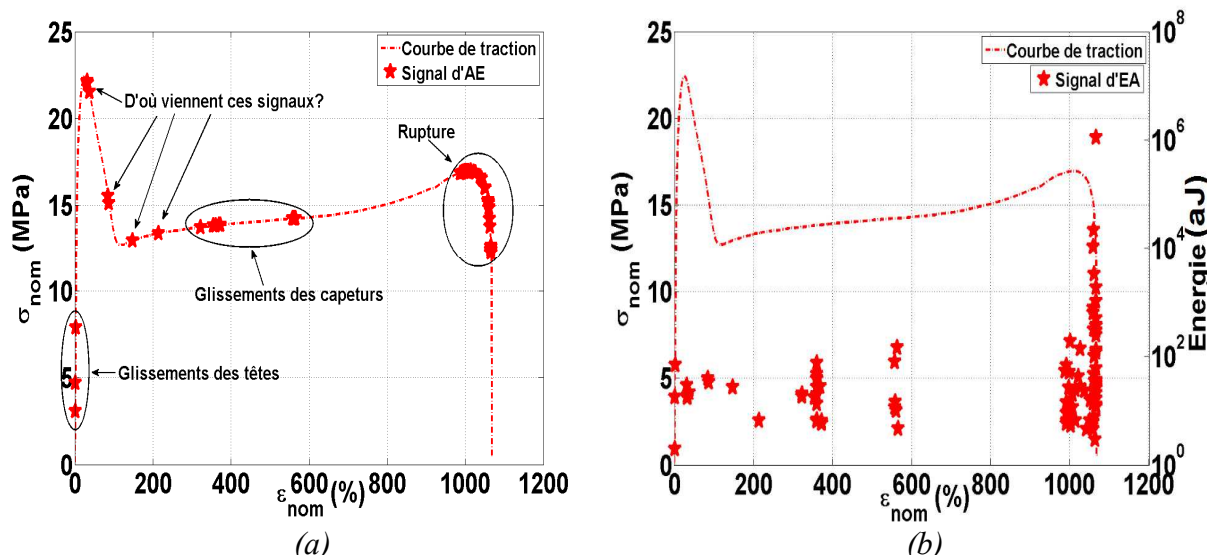


Figure.IV.3. Courbe contrainte/déformation d'un essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ sur une éprouvette de PE C_{que} ($\chi_c = 63 \%$) (a) activité acoustique, et (b) énergie des signaux.

Malheureusement, aucun signal d'EA n'a été localisé sur l'éprouvette au cours des essais dans ces conditions par conséquent, nous ne pouvons pas déterminer la position des signaux enregistrés par chacun des capteurs. Cependant, plusieurs observations peuvent être faites concernant l'origine de certains groupes de signaux (Figure.IV.3.a).

Tout d'abord, la détection de signaux d'EA dès le début de la déformation élastique du matériau ($\epsilon_{\text{nom}} < 5 \%$ et $\sigma_{\text{nom}} < 10 \text{ MPa}$) est surprenante. En effet, dans le domaine purement élastique, la déformation du matériau est entièrement réversible ainsi aucun micro-mécanisme de plasticité et d'endommagement ne devrait apparaître au sein du matériau. Par conséquent, nous pouvons conclure que ces signaux ne proviennent pas du matériau. Au cours des essais, nous avons pu observer que l'acquisition de signaux était récurrente dès la mise en charge des éprouvettes ainsi qu'aux très faibles déformations et dépendait de l'intensité avec laquelle les mors de traction étaient serrés contre les têtes des éprouvettes. Ces signaux d'EA proviennent donc vraisemblablement de sources parasites dont l'origine est identifiée comme étant des glissements des têtes des éprouvettes dans les mors de serrage de la machine de traction. En effet, lors de la mise en charge des éprouvettes, de petits glissements apparaissent entre les têtes des éprouvettes et les mors de serrage. Ceux-ci engendrent une libération d'énergie acoustique pouvant être détectée par les capteurs.

Entre 300 et 600 % de déformation, nous remarquons une soudaine augmentation de l'activité acoustique. À ces grandes déformations, une striction s'est déjà formée sur l'éprouvette. La zone de striction est associée à une réduction importante de la section de l'éprouvette qui s'étend au cours de l'essai. Lorsque la zone de striction atteint les capteurs, cette réduction soudaine de la section engendre une dégradation de la qualité de serrage des bandes de Téflon utilisées initialement pour maintenir fermement les capteurs au contact de la surface du matériau. Le serrage devient plus lâche engendrant le glissement des capteurs sur la surface du matériau, ce qui dégrade la qualité de couplage des capteurs voire même entraîne parfois le décollement des capteurs de la surface du matériau. Ces glissements aléatoires sont donc à l'origine de signaux d'EA parasites. Par la suite, nous analyserons l'activité acoustique jusqu'à $\epsilon_{\text{nom}} = 200 \%$.

Enfin, un très grand nombre de signaux est détecté lors de la rupture du matériau qui apparaît ici à un peu plus de 1000 % de déformation. La rupture est un mécanisme connu pour être associé à la libération de grandes quantités d'énergie acoustique [DEG95, DUN68]. Néanmoins, le mécanisme de rupture n'est pas celui que nous cherchons à étudier au cours de cette thèse.

Ainsi, compte-tenu des nombreuses sources d'EA parasites, nous pouvons nous interroger sur l'origine des signaux acquis entre le seuil de plasticité et jusqu'aux environs de 200 % de déformation. À ce stade de la déformation, la striction n'est pas encore parvenue au niveau des capteurs, par conséquent ces signaux ne sont pas originaires de glissements des capteurs sur la surface des éprouvettes. Ces signaux proviennent-ils du glissement des têtes des éprouvettes dans les mors de traction, de bruits extérieurs tels que des vibrations de la machine de traction ou sont-ils simplement originaires du matériau?

Afin de répondre à cette question, nous avons mis en place un protocole expérimental en deux étapes :

- Réduction, voire suppression des contributions parasites issues des glissements des têtes des éprouvettes dans les mors de traction à l'aide de cycles de charge et décharge avant chaque essai;
- Détermination de l'origine des signaux non localisés en comparant l'activité acoustique de deux types d'éprouvettes.

2.4. PRE-CYCLES

Afin de limiter ou de réduire la détection de signaux d'EA parasites provenant de glissements des têtes des éprouvettes dans les mors de serrage lors des essais, en particulier au cours de la déformation élastique des matériaux, nous avons effectué des cycles de charge et décharge avant chaque essai de traction. L'opération consiste donc à imposer aux éprouvettes 6 cycles successifs dans le domaine des forces correspondant à une déformation purement élastique des matériaux. La force maximale atteinte lors de la charge de l'éprouvette augmente de 50 N entre chaque cycle et descend jusqu'à une force de 200 N lors de la décharge. Entre chaque cycle, les deux mors de traction sont fortement resserrés afin d'optimiser le serrage des mors et d'éviter de nouveaux glissements des têtes des éprouvettes lors de l'essai de traction. La Figure.IV.4 montre un exemple de 6 pré-cycles effectuées avant un essai de traction sur une éprouvette de PE D_{que} à la vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Dans ce cas, la force maximale atteinte lors des pré-cycles croît de 1050 N à 1300 N. Nous constatons que des signaux d'EA, associés aux glissements des têtes des éprouvettes dans les mors de serrages, ont été détectés lors des trois premiers cycles. En revanche, aucun signal n'a été enregistré au cours des trois derniers cycles. De manière plus générale lors des pré-cycles, que nous avons effectués, la quasi-totalité des signaux parasites ont été enregistrés lors des trois ou quatre premiers cycles, et très rarement lors des deux ou trois derniers cycles. Nous en déduisons que soit les glissements dans les mors sont devenus indétectables car ils ont désormais une énergie très faible soit ils ont été éliminés par les multiples resserrages. Cette procédure de pré-cycles permet de réduire voire de supprimer l'enregistrement de ce type de signaux parasites au cours des essais.

Ces pré-cycles permettent aussi de s'assurer que le seuil d'acquisition est bien réglé et que des signaux provenant de bruits extérieurs ne sont pas collectés, en condition d'essai, comme le montre clairement l'absence de signaux durant les 3 derniers cycles (Figure.IV.4).

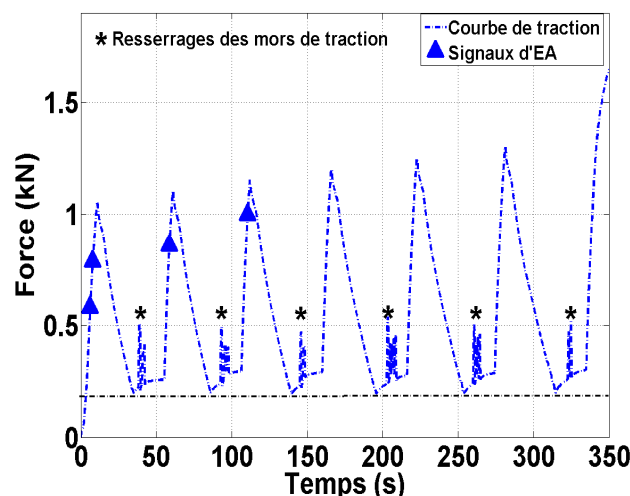


Figure.IV.4. Exemple de pré-cycles effectués avant un essai de traction. Les étoiles noires indiquent les resserrages des mors entre chaque cycle. Les signaux d'EA associés aux resserrages des mors ne sont pas représentés.

2.5. IDENTIFICATION DE L'ORIGINE DES SIGNAUX

Comme nous l'avons montré, la localisation de signaux d'EA n'est pas toujours possible compte-tenu de la forte atténuation des ondes US dans les PE. Ainsi, la position des sources d'EA ne peut être déterminée et nous ne pouvons pas affirmer que les signaux détectés proviennent ou non du matériau. L'origine physique des signaux est donc inconnue.

Afin de déterminer l'origine des signaux d'EA enregistrés au cours des essais, nous avons développé une méthodologie originale fondée sur la comparaison de l'activité acoustique enregistrée sur deux types de géométries d'éprouvettes différentes : une éprouvette de traction classique, de type haltère, et une géométrie que nous appellerons par la suite « anti-éprouvette ». La seule différence géométrique entre les deux éprouvettes est la largeur du corps.

2.5.1. Éprouvette haltère

Les éprouvettes classiques de traction ont une longueur, une largeur et une épaisseur dans la zone utile de dimensions 20 x 14 x 6 mm (Figure.IV.5). Les dimensions des têtes de ce type d'éprouvette sont plus grandes que celles du corps afin de concentrer la contrainte et la déformation du matériau dans cette zone. Lors d'un essai de traction sur ces éprouvettes, les signaux d'EA enregistrés peuvent provenir de la déformation plastique et de l'endommagement du matériau, mais aussi de sources parasites associées aux glissement des têtes des éprouvettes dans les mors de serrage ou encore de bruits extérieurs comme par exemple des vibrations de la machine d'essais mécaniques. Cependant, comme nous l'avons déjà mentionné, la localisation d'événements d'EA n'est pas toujours possible.

Par conséquent, l'identification des signaux provenant des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement du matériau est difficile. Nous avons donc choisi d'effectuer des essais de traction sur des « anti-éprouvettes » afin de différencier les signaux provenant du matériau de ceux issus de sources parasites.

2.5.2. « Anti-éprouvette »

Le corps des « anti-éprouvettes » utilisées a pour dimensions (longueur, largeur et épaisseur) 20 x 33 x 6 mm, comme le montre la Figure.IV.5. Ces éprouvettes présentent un corps plus large que leur tête, ce qui implique que la déformation et la contrainte ne sont plus concentrées dans le corps. Ce dernier ne subit qu'une petite déformation élastique au cours des essais, ce qui ne devrait pas entraîner de libération d'énergie acoustique par le matériau. De plus, les têtes des deux types d'éprouvettes testées ont les mêmes dimensions: 10 x 20 x 6 mm. Par conséquent, à une force donnée, les têtes des deux types d'éprouvettes subissent les mêmes déformations et glissements au cours des essais. Ainsi, au cours d'un essai de traction sur une « anti-éprouvette », les signaux collectés ne peuvent pas provenir de la déformation plastique et de l'endommagement du matériau, en revanche ils ne peuvent qu'être issus de sources parasites associées à des bruits extérieurs (vibrations de la machine d'essais mécaniques) ou encore de glissements des têtes des « anti-éprouvettes » dans les mors de serrage.

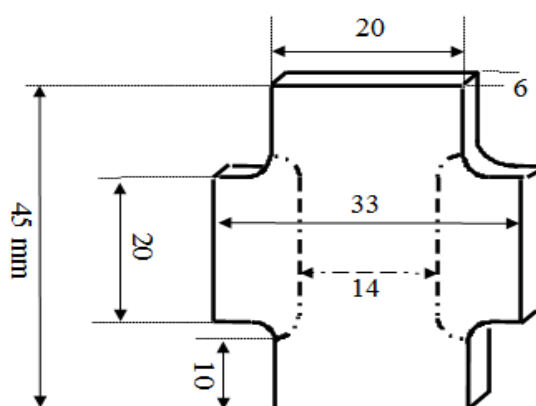


Figure.IV.5. Dimensions des éprouvettes étudiées pour discriminer les sources des signaux d'EA. L'« anti-éprouvette » est représentée par les traits noirs pleins et l'éprouvette classique par les pointillés noirs.

2.5.3. Comparaison de l'activité acoustique

L'origine des différentes sources d'EA des signaux est clairement identifiée pour chaque type d'éprouvette. Cette méthodologie devrait nous permettre de différencier les signaux d'EA originaires de la déformation plastique et de l'endommagement du matériau de ceux issus de sources parasites. La discrimination des sources des signaux d'EA enregistrés peut donc être effectuée en comparant, à une force donnée, l'activité acoustique collectée de chacune des deux types d'éprouvettes. Le Tableau.IV.1 résume la démarche utilisée.

Éprouvettes	Origine des signaux d'EA		
Éprouvette haltère	Matériau	Glissements des têtes	Bruits extérieurs
« Anti-éprouvette »		Glissements des têtes	Bruits extérieurs
Résultat de la discrimination	Matériau		

Tableau.IV.1. Schéma de la méthodologie utilisée pour discriminer l'origine des sources des signaux d'EA.

La Figure.IV.6.a montre la courbe mécanique force-temps couplée à l'activité acoustique enregistrée sur une éprouvette haltère de PE D_{que} à la vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Les

6 pré-cycles ne sont pas représentés et les signaux d'EA sont directement tracés sur la courbe de traction. Nous constatons que très peu de signaux d'EA (non localisés) ont été collectés au cours de l'essai et que la majorité des signaux a été détectée autour du seuil de plasticité.

L'activité acoustique collectée lors d'un essai sur une « anti-éprouvette » est présentée sur la Figure.IV.6.b pour une vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Nous remarquons qu'environ 70 signaux ont été enregistrés, ce qui met clairement en évidence l'existence de sources parasites au cours des essais. A la vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, la force maximale atteinte, lors des essais de traction sur « anti-éprouvettes », est d'environ 2450 N, ce qui est supérieur à la force maximale atteinte lors des essais sur des éprouvettes haltères qui est de 1750 N (Figure.IV.6.a). Nous remarquons qu'en dessous de 2000 N, le nombre de signaux (parasites) détectés est extrêmement faible. En revanche, une importante activité acoustique est observée au-dessus de 2000 N pouvant être corrélée à l'apparition de glissements massifs des têtes des « anti-éprouvettes » précédant leur arrachement des mors de serrage. Nous pouvons en conclure que très peu de signaux parasites (bruits extérieurs + glissements des têtes) sont détectés avant le glissement intense des têtes des éprouvettes dans les mors car ce glissement apparaît pour des forces bien supérieures à la force maximale atteinte lors des essais sur éprouvettes haltères. Nous avons obtenu le même résultat sur 2 autres essais de traction réalisés une vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ sur une « anti-éprouvette » de PE D_{que}.

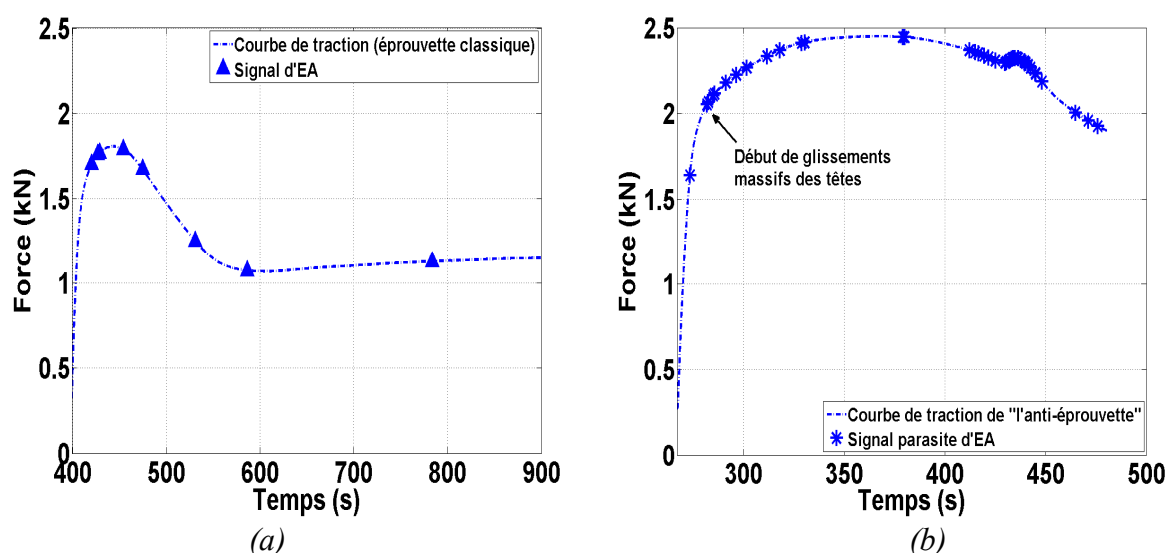


Figure.IV.6. Activité acoustique enregistrée au cours d'un essai de traction sur (a) une éprouvette haltère et (b) une « anti-éprouvette » de PE D_{que} à la vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$.

Nous avons discerné les forces auxquelles des signaux exclusivement parasites sont détectés dans le cas d'essais sur « anti-éprouvette ». Les forces, auxquelles ces signaux ont été enregistrés, peuvent être comparées à celles des signaux collectés lors d'un essai sur une éprouvette haltère dans les mêmes conditions expérimentales. Sur la Figure.IV.7, nous comparons les forces auxquelles les signaux d'EA ont été détectés en fonction du nombre de signaux enregistrés au cours d'un essai de traction effectué à la vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ sur les deux types d'éprouvettes (haltère et « anti-éprouvette »). Lors d'un essai sur une « anti-éprouvette », nous constatons que la majorité des signaux sont enregistrés pour des forces supérieures à celles atteintes lors d'un essai sur une éprouvette haltère. En effet, comme le montre la Figure.IV.7, un seul signal parasite de l'essai sur l'« anti-éprouvette » est détecté en dessous de la force maximale atteinte sur l'éprouvette classique. Par conséquent, très peu de signaux d'EA issus de sources parasites (glissements des têtes + bruits extérieurs) ne devraient être collectés lors des essais sur éprouvette haltère.

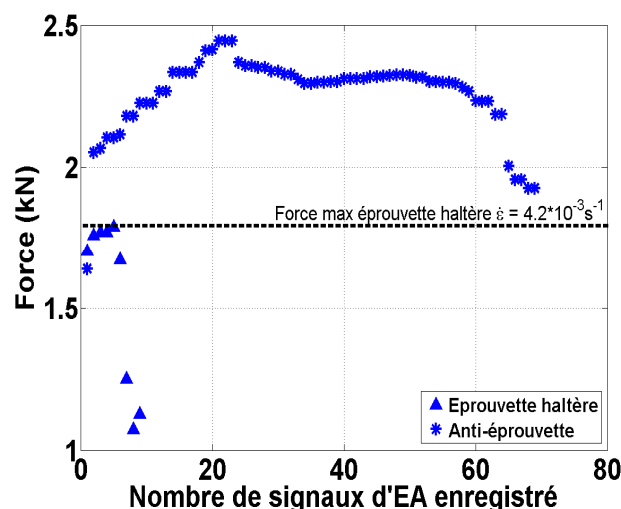


Figure.IV.7. Comparaison des forces auxquelles ont été enregistrées les signaux d'EA lors d'un essai sur une éprouvette haltère et une « anti-éprouvette » de PE D_{que} la vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} s^{-1}$.

À l'aide de cette méthodologie, nous pouvons donc conclure, qu'au cours d'un essai de traction sur une éprouvette haltère, très peu de signaux d'EA enregistrés proviennent de sources parasites. Par conséquent, la majorité des signaux (non localisés) d'EA détectés sont bien originaires de la déformation plastique et/ou de l'endommagement du matériau. Ce résultat montre aussi que, malgré l'atténuation élevée des ondes US dans nos matériaux, la technique d'EA est suffisamment sensible pour détecter une partie des signaux générés par le PE lors de sa déformation plastique et/ou de son endommagement.

3. ANALYSE DU COMPORTEMENT DE L'ACTIVITE ACOUSTIQUE D'UN DES POLYMERES ETUDIES, LE PE D_{QUE}

Dans cette partie, nous étudierons l'activité acoustique d'une des PE étudiés, le PE D_{que} dont le taux de cristallinité est de 68 % et qui se déforme en présence de micro-vides après le seuil de plasticité.

Dans un premier temps, nous rappellerons les différents mécanismes de plasticité et d'endommagement qui peuvent libérer de l'énergie acoustique au cours d'un essai de traction. Dans un deuxième temps, nous exposerons nos résultats sur l'influence de la vitesse de déformation sur l'activité acoustique. Dans un troisième temps, nous présenterons l'évolution du nombre de signaux d'EA au cours d'un essai de traction. Finalement, nous analyserons des paramètres d'EA lors d'un essai.

3.1. RAPPELS SUR LES MICRO-MECANISMES DE PLASTICITE ET D'ENDOMMAGEMENT

Aucune étude ne s'est attachée à corréler, même partiellement, les signaux d'EA aux micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement dans ce type de matériaux. Malheureusement, cette tâche est complexe pour trois raisons. La première est que le nombre de signaux collectés lors d'un essai est faible (Figure.IV.6.a) ce qui rend difficile une étude statistique de l'activité acoustique. La deuxième est que l'ensemble de la chaîne d'acquisition, en particulier la propagation des ondes dans les matériaux et les capteurs, modifie considérablement la forme des signaux. Et enfin, la troisième raison est que les signaux sont issus d'une avalanche

locale de nombreuses sources d'EA (ce qui permet d'avoir un effet collectif par l'interférence des ondes) associées à plusieurs micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement qui apparaissent simultanément dans le matériau. Ainsi, la détermination des caractéristiques des sources est une tâche ardue.

Parmi ces mécanismes, nous pouvons notamment citer la cavitation, le cisaillement et la fragmentation des lamelles cristallines, la transformation martensitique ou encore la rupture des fibrilles.

3.1.1. Cavitation

Lors de la cristallisation à partir de l'état fondu de plusieurs polymères semi-cristallins, Galeski *et al.* [GAL87, GAL90] ont pu détecter des signaux d'EA provenant de la formation de micro-cavités entre les sphérolites. Ces auteurs ont également mis en évidence l'absence d'activité acoustique lorsque le matériau ne forme pas de cavitation lors de sa cristallisation prouvant ainsi, la corrélation directe entre l'EA et la formation de micro-cavités.

Ce phénomène expansif s'accompagne d'une augmentation du volume du matériau et la formation de microcavités engendre des déplacements de la phase amorphe et des lamelles cristallines situées dans son environnement proche. Ces mouvements peuvent être associés à la propagation d'ondes acoustiques (Figure.IV.8).

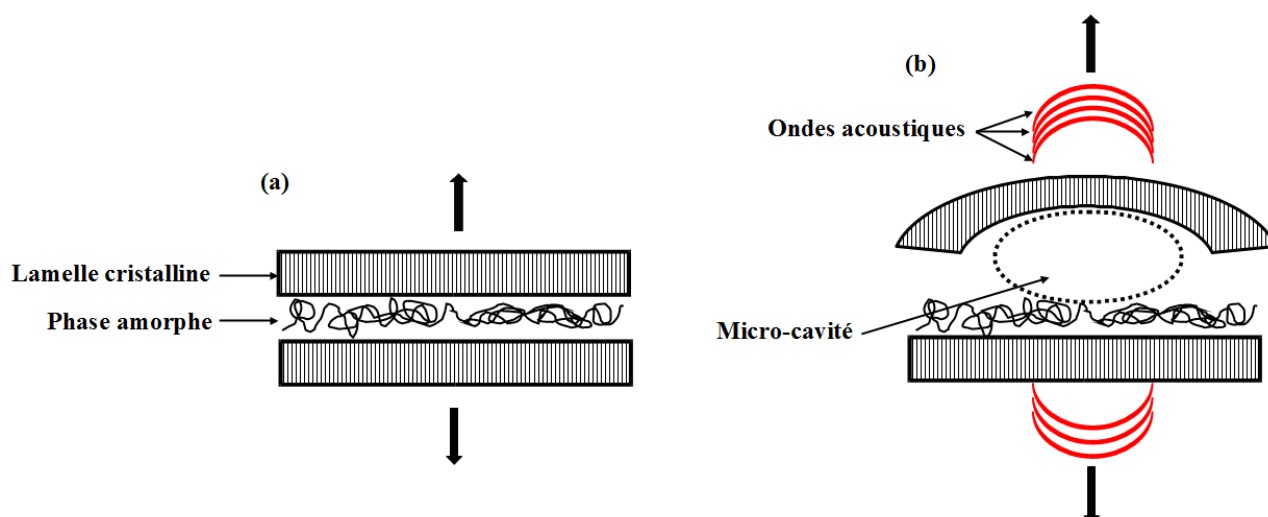


Figure.IV.8. Schéma (a) d'un empilement de lamelles cristallines non déformées et (b) libération d'ondes acoustiques lors de la formation d'une micro-cavité.

3.1.2. Cisaillement et fragmentation des lamelles cristallines

Lors d'un essai de traction sur polymère semi-cristallin, il est généralement considéré que le cisaillement des lamelles cristallines s'initie au seuil de plasticité. Des glissements cristallographiques sont à l'origine de la fragmentation (rupture) des lamelles cristallines en blocs cristallins [GAL03]. Lors de leur rupture, les lamelles cristallines peuvent se mettre à vibrer générant ainsi des ondes acoustiques (Figure.IV.9).

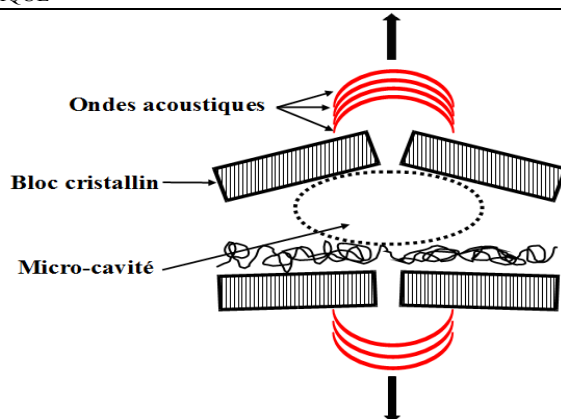


Figure.IV.9. Schéma de la libération d'ondes acoustiques lors de la rupture de lamelles cristallines en présence de cavitation [HUM10a].

3.1.3. Transformation martensitique

La transformation martensitique dans les métaux [PAS75] et les aciers austénitiques 304L [MAI08] est un mécanisme de plasticité, source d'EA. Cette transformation, associée à une réorientation des chaînes de la phase cristalline sous contrainte, s'initie légèrement avant le seuil de plasticité mais pour différentes déformations et contraintes macroscopiques pour les PE étudiés [HUM09]. Ainsi, une partie des signaux d'EA enregistrés peut être issue de ce mécanisme lors d'un essai de traction.

3.1.4. Rupture des fibrilles

La rupture de fibrilles apparaît essentiellement lors de la rupture globale du matériau. Cependant, aux grandes déformations, quelques ruptures de fibrilles peuvent avoir lieu dans la zone fibrillée (dans la striction des éprouvettes) engendrant une libération d'énergie acoustique élevée. L'acquisition des signaux issus de ces sources a donc potentiellement lieu en fin d'essai. Ainsi aux grandes déformations, nous pouvons supposer que quelques signaux peuvent provenir de ce type de sources très énergétiques mais situées à une grande distance des capteurs.

Ainsi, plusieurs micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement peuvent participer à la libération d'énergie acoustique lors d'un essai de traction. Cependant, la faible activité acoustique rend la corrélation entre les signaux d'EA et les micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement difficile. Néanmoins, comme nous l'avons déjà noté, les signaux enregistrés ne peuvent qu'être issus de l'apparition en cascades locales d'un grand nombre de sources. De plus, les mécanismes associés à ces sources peuvent apparaître simultanément dans le matériau. Par conséquent, dans leur ensemble, les signaux collectés sont probablement issus de sources d'EA originaires de plusieurs mécanismes de plasticité différents et d'endommagement. Par la suite, nous utiliserons parfois le terme « événements microstructuraux » pour désigner la formation simultanée de ces mécanismes.

3.2. EFFET DE LA VITESSE DE DEFORMATION

De nombreux auteurs ont montré qu'une augmentation de la vitesse de sollicitation a un effet significatif sur l'activité acoustique au cours de la déformation plastique et de l'endommagement de matériaux céramiques, métalliques et composites [ROT78, DOR80, HAM74]. L'influence de la vitesse de déformation sur l'activité acoustique n'a jamais pu être vérifiée sur les polymères semi-cristallins au-dessus de leur température de transition vitreuse. Nous allons donc chercher à montrer l'effet de la vitesse de déformation sur l'activité acoustique

sur le PE D_{que} ($\chi_c = 68\%$) lors d'essais de traction.

La Figure.IV.10.a représente les courbes contrainte/déformation couplées au nombre cumulé de signaux d'EA détectés pour des essais réalisés aux trois vitesses de déformation $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, $8,3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ et $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. Nous mettons en évidence que le nombre de signaux enregistrés augmente avec la vitesse de déformation. En effet, ici 9, 20 et 30 signaux d'EA ont été acquis pour les vitesses de déformation respectives de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, $8,3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ et $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. En complément de ces observations, nous avons vérifié que l'augmentation du nombre de signaux détectés n'est pas liée à une activité acoustique plus intense associée aux glissements des mors de traction sur les têtes des éprouvettes ou de vibrations de la machine d'essais. En effet, en augmentant la vitesse de déplacement de la traverse, le nombre de signaux détectés originaires de sources parasites n'augmente pour des forces inférieures à celle du seuil de plasticité. De plus, la majorité des signaux d'EA est enregistrée autour du seuil de plasticité, qui est classiquement considéré comme l'instant à partir duquel s'initie la déformation plastique des lamelles cristallines [GAL03]. Ces signaux peuvent donc être issus du cisaillement, de la fragmentation des lamelles cristallines ou encore de la cavitation ou de la transformation martensitique, sans que nous puissions pour le moment distinguer ces mécanismes sur l'activité acoustique. En outre, nous remarquons que l'activité acoustique démarre systématiquement avant le seuil de plasticité, indiquant que des micro-mécanismes de plasticité et/ou d'endommagement apparaissent très tôt au cours de la déformation du matériau. Aux plus grandes déformations, le nombre de signaux détectés est très faible mais augmente avec la vitesse de déformation.

Outre la détection d'un nombre de signaux d'EA plus élevé, nous pouvons aussi observer que l'énergie cumulée des signaux augmente avec la vitesse de déformation (Figure.IV.10.b). Nous constatons que l'énergie cumulée augmente significativement avec la vitesse de déformation et atteint ici respectivement 100, 750 et 1100 aJ à 200 % de déformation nominale. Une augmentation de la vitesse de déformation des matériaux conduit à la formation d'un plus grand nombre d'événements microstructuraux simultanés, apparaissant en avalanche à l'échelle locale et engendrant une libération d'énergie acoustique plus élevée. Notons qu'une part significative de l'énergie cumulée est enregistrée autour du seuil de plasticité pour chaque vitesse et en fin d'essai pour les deux vitesses de déformation les plus élevées.

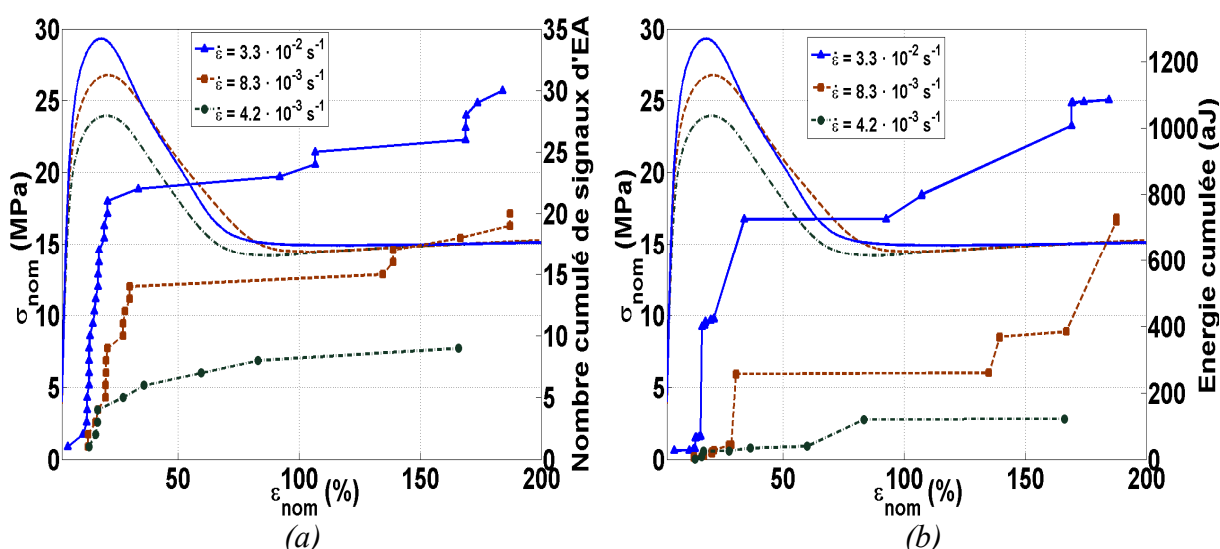


Figure.IV.10. Influence de la vitesse de déformation sur (a) le nombre cumulé de signaux d'EA et (b) l'énergie cumulée enregistrés au cours d'essais de traction sur un PE D_{que}.

Au cours des essais réalisés à la plus haute vitesse de déformation ($3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$), l'acquisition de signaux d'énergie plus élevée peut être corrélée à l'enregistrement d'événements d'EA (signaux localisés sur l'éprouvette), comme le montre la Figure.IV.11.a. L'enregistrement d'événements d'EA confirme que de l'énergie acoustique est libérée par le PE au cours de sa déformation plastique et/ou son endommagement. Ces événements sont détectés en particulier au niveau du seuil de plasticité, validant que des micro-mécanismes de plasticité et/ou d'endommagement apparaissent très tôt au cours des essais.

À partir des temps d'arrivée des signaux sur chaque capteur, nous pouvons déterminer approximativement la position des sources d'EA sur l'éprouvette, comme le montre la Figure.IV.11.b. Etant donné que seulement deux capteurs sont utilisés, la localisation ne peut être que linéaire et nous avons considéré que l'ensemble de la déformation n'a lieu qu'entre les deux capteurs. Initialement, les capteurs sont distants d'environ 12 mm et, sur la Figure.IV.11.b, la ligne pointillée noire représente le déplacement du capteur du haut sur l'éprouvette, le capteur du bas est considéré fixe au cours des essais. Lors de cet essai, 5 événements d'EA ont été observés et, aux faibles déformations, leur position approximative est bien située autour du centre de l'éprouvette.

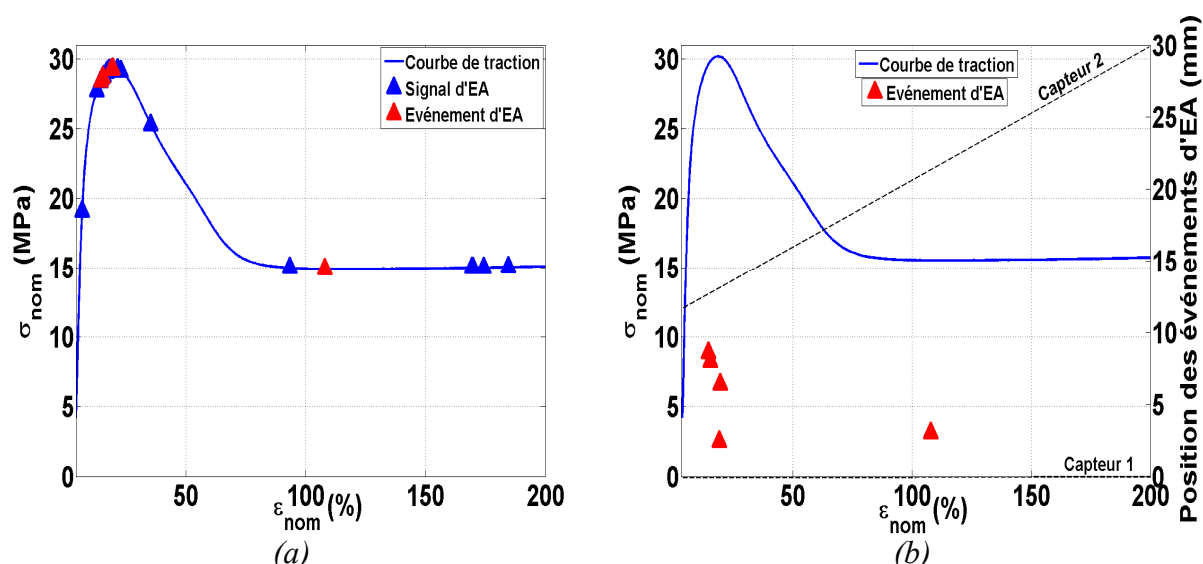


Figure.IV.11. Événements d'EA (a) sur la courbe de traction et (b) position sur l'éprouvette lors d'un essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ sur un PE D_{que} .

Nous venons de montrer dans cette partie que les conditions expérimentales les plus favorables à la détection de signaux d'EA sont pour des vitesses de déformation élevées. Par conséquent, pour la suite, nous avons choisi de réaliser la totalité de nos essais à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$.

3.3. EVOLUTION DU NOMBRE CUMULE DE SIGNAUX D'EA AU COURS DES ESSAIS DE TRACTION

L'activité acoustique présente trois phases au cours de la déformation du matériau, comme le montre la Figure.IV.12 représentant le nombre cumulé de signaux d'EA détectés lors de 6 essais tous réalisés à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ sur des éprouvettes de PE D_{que} .

La première phase, qui s'étend jusqu'aux environs de 50 % de déformation, se caractérise par une activité acoustique qui représente plus de la moitié des signaux (et des événements) d'EA. Aucun signal n'est acquis lors de la déformation purement élastique du matériau. Des signaux d'EA,

pouvant être associés à l'initiation de la plasticité et/ou à l'endommagement du PE, sont collectés avant le seuil de plasticité. Initialement, les différents micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement peuvent apparaître simultanément dans le matériau. Ces événements microstructuraux se forment en cascade localement (distance largement inférieure à la longueur de cohérence L_{coh}) et sont spatialement fortement localisés au centre de l'éprouvette. Ainsi, les ondes générées peuvent interférer entre-elles, ce qui permet de bénéficier d'un effet d'addition partielle de l'amplitude de chaque onde. Par le jeu de ces interférences, en particulier celles constructives, il est possible qu'un signal résultant présente une amplitude maximale élevée. Après propagation dans le milieu atténuant, cette amplitude peut encore être supérieure au seuil de détection du système d'acquisition et par conséquent le signal est enregistré par les capteurs. L'acquisition des signaux est donc possible bien qu'à ce stade des essais la distance approximative entre le centre de l'éprouvette, donc des sources d'EA, et les capteurs est d'environ 7-8 mm, ce qui signifie que l'onde a perdu approximativement 60 % de son énergie lors du trajet.

La seconde phase est associée aux déformations intermédiaires comprises environ entre 50 % et 150 %. Au cours de cette phase, le nombre de signaux (et d'événements) d'EA est très faible pour l'ensemble des essais réalisés. Nous pouvons expliquer ce changement de comportement par (i) l'augmentation de l'atténuation du matériau sous l'effet à la fois de l'apparition de mécanismes de plasticité et d'endommagement, et de la formation de la striction d'une part et (ii) la dispersion progressive des sources d'EA sur l'éprouvette. En effet avec la formation de la striction, les sources d'EA apparaissent sur une zone de plus en plus étendue ce qui implique une diminution sensible du phénomène d'interférences des ondes car l'étendue spatiale sur laquelle celles-ci sont générées devient de l'ordre de grandeur de L_{coh} voire supérieure. Les signaux résultants sont ainsi moins énergétiques et leur détection devient moins probable. En effet, les signaux doivent parcourir une distance minimum jusqu'aux capteurs d'environ 4-5 mm. Compte-tenu de l'atténuation, arrivés aux capteurs l'amplitude des signaux est majoritairement située sous le seuil d'acquisition.

La dernière phase démarre aux environs de 150 % et s'étend jusqu'à la fin de l'essai (200 %). Lors de cette troisième phase, nous observons une nouvelle augmentation de l'activité acoustique mais celle-ci est moins intense que celle de la première phase. A ce stade de la déformation, l'apparition des sources d'EA est toujours fortement diffuse sur l'éprouvette. Cependant, la striction se rapproche progressivement des capteurs ce qui implique que certains signaux originaires des sources situés dans les coudes de la striction parcourent une distance de plus en plus faible avant d'atteindre les capteurs. Par conséquent, l'énergie perdue par les ondes acoustiques lors de leur propagation dans le matériau se trouve réduite et la probabilité que leur amplitude maximale soit au-dessus du seuil d'acquisition augmente. Cependant, nous pouvons penser que malgré la très forte atténuation US dans la zone de la striction, ces signaux pourraient également provenir de sources d'EA beaucoup plus lointaines des capteurs, dans la zone fibrillée par exemple, et dont l'énergie libérée par ces mécanismes, tels que des ruptures de fibrilles, serait plus élevée.

Notons que L_{coh} correspond à la dimension typique des sources d'EA. Sa détermination nécessite de prendre en compte l'influence du milieu de propagation d'une part, et du capteur d'autre part sur les paramètres des signaux d'EA détectés. Cependant, ces deux étapes sont complexes et ne nous ont pas permis de déterminer la valeur de L_{coh} des signaux détectés.

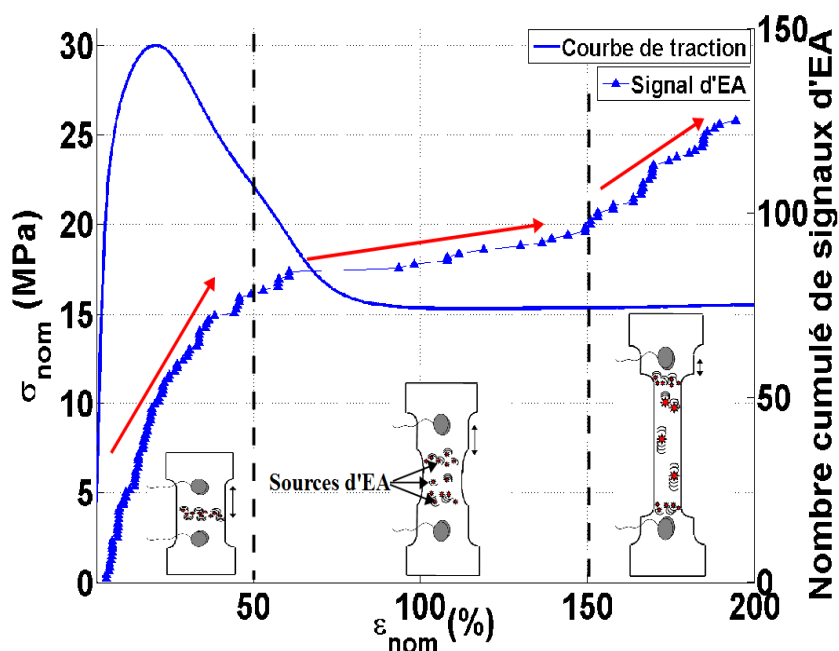


Figure.IV.12. Evolution du comportement du nombre cumulé de signaux d'EA (ici considéré pour 6 essais à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ sur du PE D_{que}) au cours de la déformation, corrélée à la distribution spatiale des sources d'EA sur une éprouvette.

3.4. ANALYSE DES PARAMETRES DES SIGNAUX D'EA

Nous entreprenons de suivre l'évolution de certains paramètres des signaux acoustiques (énergie, amplitude maximale, durée et fréquence moyenne) au cours d'un essai réalisé à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ sur un PE D_{que} .

Les paramètres des signaux d'EA dépendent de nombreux facteurs. Tout d'abord, ils dépendent de la source d'EA (énergie, durée, contenu fréquentiel, etc...). Deux mécanismes différents entraînent *a priori* une libération d'énergie différente lors de leur apparition, ne serait-ce que par la dépendance entre la taille de la source et l'énergie élastique emmagasinée avant sa libération. Le contenu fréquentiel des ondes est lié aux propriétés locales de la source d'EA. Ensuite, les ondes générées vont se propager dans le milieu modifiant la signature acoustique, ce qui est particulièrement le cas ici puisque le milieu est très atténuant. Outre la dissipation intrinsèque du matériau, la géométrie des éprouvettes affecte également la propagation des ondes (Figure.III.9 et Figure.III.19). Ainsi la distance parcourue par les ondes avant d'atteindre les capteurs serait une donnée à prendre en compte, lorsque celle-ci est connue. Enfin, les ondes sont enregistrées par des capteurs résonnants qui déforment considérablement la forme des signaux, ce qui affecte les descripteurs. Par conséquent, les signaux collectés sont une image déformée des sources, il faut donc garder à l'esprit que les descripteurs enregistrés ne correspondent pas aux caractéristiques réelles des sources d'EA. Cependant, nous pouvons considérer l'hypothèse qu'après leur propagation dans le milieu et leur détection par les capteurs, les signaux enregistrés restent *a priori* différents si les ondes générées par les différentes sources sont différentes.

La Figure.IV.13.a représente la courbe contrainte/déformation nominale ainsi que l'énergie des signaux et des événements d'EA. Nous remarquons que l'énergie des signaux s'étend environ sur deux décades et est comprise entre quelques dixièmes et quelques centaines d'aJ. Comme nous l'avons déjà remarqué, ce résultat met évidence la faible valeur d'énergie des signaux d'EA provenant de la déformation plastique et de l'endommagement de PE. Pour comparaison, les

signaux collectés lors de la déformation plastique et l'endommagement de matériaux composites à matrice céramique peuvent atteindre des énergies de l'ordre de 10^6 aJ [SHA08]. La forte atténuation des ondes US dans nos matériaux peut expliquer en partie ces faibles énergies enregistrées. L'atténuation affecte aussi l'amplitude maximale des signaux, comprise entre 0,025 et 1,259 V pour ce PE, comme le montre la Figure.IV.13.b. La majorité des signaux et des événements d'EA ont une amplitude maximale comprise entre 0,03 et 0,2 V. En outre, nous vérifions qu'en moyenne l'énergie et l'amplitude maximale des événements d'EA sont plus élevées que celles des signaux non localisés. Nous reverrons ce résultat sur un plus grand nombre d'essais.

La durée des signaux varie entre quelques dizaines et plusieurs centaines de microsecondes (Figure.IV.13.c). Nous constatons que la majorité des signaux a une durée inférieure à 100 μ s. La fréquence moyenne des signaux au cours de l'essai est représentée sur la Figure.IV.13.d. Celle-ci est comprise entre 200 et 500 kHz environ. Cependant, ces valeurs de fréquence moyenne sont fortement affectées par la sensibilité en réception des capteurs et ne sont pas représentatives du vrai contenu fréquentiel des sources d'EA. Néanmoins, l'acquisition de ces signaux signifie que certaines des composantes spectrales des sources sont situées dans le domaine fréquentiel étudié. Pour ces deux paramètres, nous ne constatons pas de différences significatives entre les signaux d'EA non localisés et les événements d'EA.

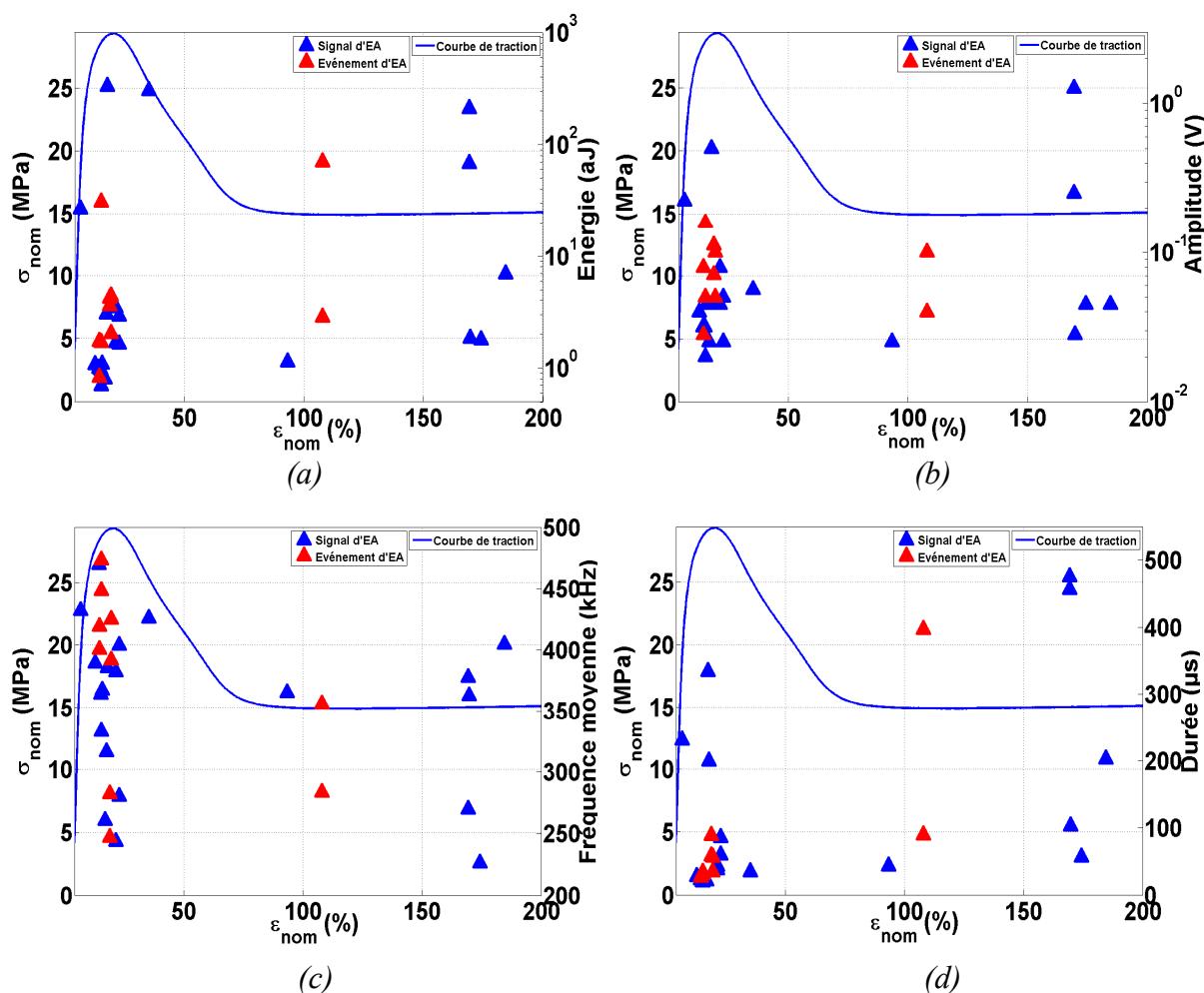


Figure.IV.13. Paramètres d'EA (a) l'énergie, (b) l'amplitude maximale, (c) la durée et (d) la fréquence moyenne des signaux non localisés (triangles bleu) et des événements d'EA (triangles rouge) enregistrés lors d'un essai réalisé à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ sur un PE D_{que} .

Dans cette partie, nous avons montré que l'activité acoustique augmente assez significativement avec la vitesse de déformation. En particulier, nous avons déterminé des conditions expérimentales permettant la localisation des signaux d'EA lors des essais à la vitesse de déformation de $3,3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. Ce résultat confirme que le PE libère de l'énergie acoustique au cours de sa déformation plastique et/ou son endommagement. De plus, des signaux (et des événements) d'EA sont collectés avant le seuil de plasticité et peuvent être associés aux prémices de la plasticité et/ou de l'endommagement du matériau. Nous avons aussi vu que l'activité acoustique présente trois phases au cours de la déformation essentiellement attribuées à l'évolution de la distribution spatiale des sources d'EA sur les éprouvettes. Malgré la faible énergie acoustique des signaux, la technique d'EA s'avère donc être suffisamment sensible pour détecter des mécanismes de plasticité et/ou d'endommagement du matériau polymère. Cependant, dans l'ensemble, trop peu de signaux sont enregistrés lors des essais ce qui complique l'analyse statistique des caractéristiques de l'activité acoustique.

4. EFFET DE LA MICROSTRUCTURE SUR L'ACTIVITE ACOUSTIQUE

Des essais de traction ont été réalisés sur une large gamme de PE possédant des taux de cristallinité allant de 48 % à 79 %. À partir de ces essais, nous cherchons à mettre en évidence l'influence du taux de cristallinité sur l'activité acoustique. Outre le taux de cristallinité, les PE étudiés diffèrent par leurs mécanismes de formation de la cavitation. En effet, ceux-ci peuvent être classés en trois groupes selon le mécanisme [HUM10a, HUM10b, XIO13] :

- Les PE A_{que} et PE B_{que} se déforment en l'absence de cavitation. Au cours des essais de traction cela se traduit par l'absence de blanchiment des éprouvettes;
- Les PE A_{iso}, PE B_{iso}, PE C_{que}, PE D_{que} et PE D'_{que} présentent la formation de micro-cavités. La cavitation est localisée dans la striction de l'éprouvette, ce qui indique que ce phénomène apparaît après le seuil de plasticité;
- Les PE C_{iso}, PE D_{iso} et PE D'_{iso} se déforment avec formation de micro-vides. Ces derniers apparaissent de manière homogène sur la zone centrale de l'éprouvette et se forment avant le seuil de plasticité.

Ainsi l'impact du mécanisme de cavitation pourra aussi être évalué. Nous avons effectué 6 essais de traction pour chaque PE, à l'exception des PE D'_{que} et PE D'_{iso} pour lesquels nous avons réalisé trois essais chacun.

4.1. INFLUENCE DU TAUX DE CRISTALLINITE

Les courbes contraintes/déformations ainsi que le nombre cumulé de signaux d'EA détectés lors de trois essais de traction pour chaque PE étudiés sont représentés sur la Figure.IV.14.a. Nous observons que l'évolution de l'activité acoustique est similaire pour chaque PE :

- Aucune activité mesurable dans le domaine purement élastique (Figure.IV.14.b);
- Initiation de l'activité acoustique avant ou au niveau du seuil de plasticité; la majorité des signaux est enregistrée pour $\epsilon_{\text{nom}} < 50 \%$;

- Faible activité acoustique aux déformations intermédiaires (entre 50 et 150 %);
- Nouvelle augmentation aux environs de $\epsilon_{nom} = 150$ %.

La localisation de signaux d'EA était la plupart du temps uniquement possible pour $\epsilon_{nom} < 50$ %. Quelques événements d'EA furent enregistrés pour des taux de déformation intermédiaire, tandis qu'ils furent très rarement collectés après $\epsilon_{nom} = 150$ %.

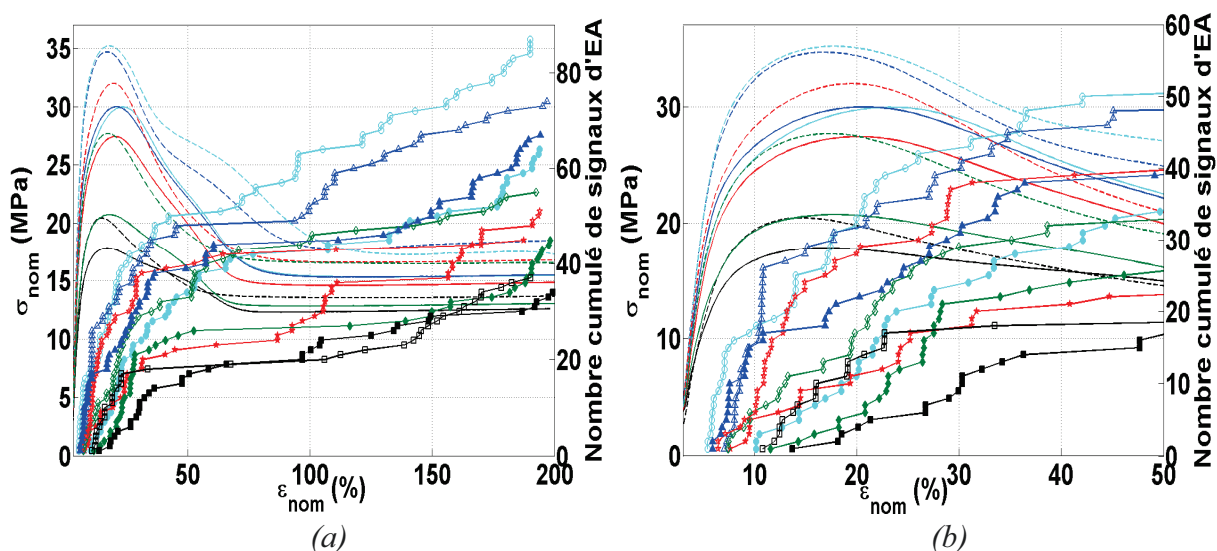


Figure.IV.14. Courbes contraintes-déformations couplées au nombre cumulé de signaux pour 3 essais de traction sur les PE de différents taux de cristallinité (a) pour la totalité des essais et (b) pour $\epsilon_{nom} < 50$ %. Pour les couleurs et les symboles se référer à la Figure.IV.15.

Une augmentation significative et quasiment linéaire du nombre de signaux d'EA est observée en fonction du taux de cristallinité (Figure.IV.15). En effet, nous avons enregistré en moyenne 8 signaux lors de nos essais sur le PE A_{que}, le PE étudié le moins cristallin, tandis que 25 et 29 signaux sont collectés en moyenne lors des essais sur les PE les plus cristallins, respectivement PE D_{iso} et PE D'_{iso}. Entre 14 et 22 signaux ont été détectés en moyenne lors de nos essais sur les PE présentant un taux de cristallinité compris entre 54 % et 74 %. Cette augmentation de l'activité acoustique peut être associée à la détection d'un plus grand nombre d'événements microstructuraux lorsque le taux de cristallinité augmente, et en particulier pour les PE qui cavitent avant le seuil de plasticité. Nous constatons aussi que des signaux sont détectés pour les PE qui se déforment en l'absence de cavitation. Pour ces PE (PE A_{que} et PE B_{que}), l'activité acoustique s'initie au niveau du seuil de plasticité. Ainsi, nous pouvons fortement supposer que des mécanismes tels que le cisaillement et la fragmentation des lamelles cristallines participent à la libération d'énergie acoustique.

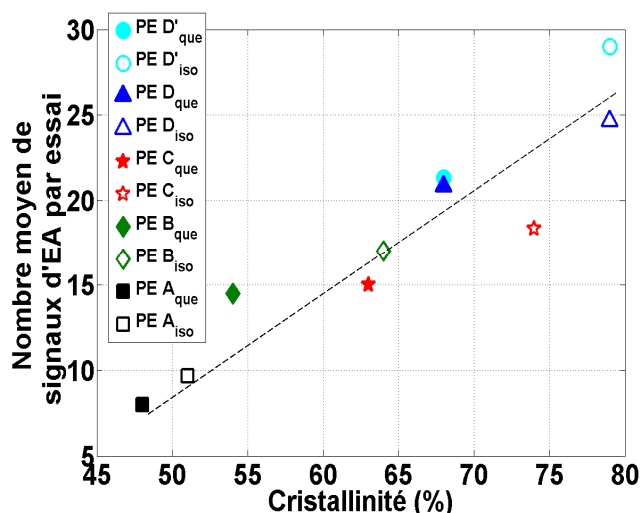


Figure.IV.15. Nombre moyen de signaux d'EA détectés par essai en fonction du taux de cristallinité des PE étudiés.

4.2. ANALYSE DES PARAMETRES DES SIGNAUX D'EA

De la même manière que pour le nombre de signaux d'EA, nous cherchons à montrer l'effet du taux de cristallinité sur des paramètres d'EA : la durée, la fréquence moyenne et l'énergie. Pour cela, nous considérons la moyenne de chacun des paramètres pour l'ensemble des signaux collectés au cours des essais.

4.2.1. Durée et fréquence moyenne

La durée moyenne des signaux d'EA dépend de la cristallinité du PE. La Figure.IV.16.a montre que la durée moyenne des signaux varie entre 150 et 300 μ s environ et augmente avec le taux de cristallinité du PE. L'écart-type sur ce paramètre est assez stable pour l'ensemble des PE, il est d'environ une fois la durée moyenne. Toutefois, la durée des signaux enregistrés dépend de plusieurs facteurs. Tout d'abord, elle dépend de la durée propre des sources d'EA libérant de l'énergie acoustique sous forme d'ondes US qui se propagent dans le matériau jusqu'aux capteurs récepteurs. Alors l'atténuation du milieu de propagation influence la durée du signal détectable. Enfin, elle dépend aussi de la durée de la résonance du capteur qui est fonction de la fréquence du signal. Ainsi, nous ne pouvons pas conclure directement que l'augmentation de la durée moyenne des signaux est liée à une durée des sources d'EA plus longue pour les PE les plus cristallins. En effet, nous ne savons pas comment évolue la durée des sources d'EA avec la cristallinité d'une part, et la réponse fréquentielle du capteur est influencée par le contact avec le matériau d'autre part. Concernant ce dernier point, nous avons constaté que la moyenne des fréquences moyennes des signaux ne semble pas dépendre du taux de cristallinité comme le montre la Figure.IV.16.b, sur laquelle la fréquence moyenne oscille autour de 300 kHz (comprise entre 280 et 340 kHz) et son écart-type ne varie qu'entre 70 à 90 kHz pour l'ensemble des PE. Cependant, la fréquence moyenne des signaux ne rend pas compte de la réponse du capteur en fonction de la fréquence sur les différents PE. En effet, lorsque le capteur est en contact avec un matériau très amortissant (comme c'est le cas des PE peu cristallins), la réponse fréquentielle du capteur, centrée sur la fréquence de résonance f_0 , est plus large bande, ce qui implique une durée de résonance plus courte. À l'inverse, lorsque l'amortissement du matériau est plus faible (ce qui est le cas des PE les plus cristallins par rapport aux PE les moins cristallins), la largeur de la bande spectrale est moins large, bien que centrée sur la même fréquence de résonance f_0 . Ainsi dans ce cas, la durée de résonance du capteur est plus longue.

Afin d'évaluer l'effet de la durée de résonance du capteur, nous avons effectué des cassures de mine de crayons suivant la méthode de Hsu-Nielsen [HSU81] sur différents PE. Ainsi, les sources artificielles d'EA sont identiques et une variation de la durée des signaux enregistrés sur les différents PE n'est pas liée à la durée des sources. Ces mesures nous ont permis de montrer que la durée des signaux augmente d'un facteur 2 entre le PE A_{que} (le moins cristallin) et le PE D_{iso} (le plus cristallin). Or, la durée des signaux d'EA acquis lors des essais augmente d'environ un facteur 1,5 entre ces 2 PE (Figure.IV.16.a). Le milieu de propagation étant le même entre les mesures avec les cassures de mines et celles au cours des essais de traction, nous prouvons que l'augmentation de la durée des signaux d'EA avec la cristallinité est majoritairement due à la résonance du capteur. Néanmoins, cette différence de durée des signaux entre les deux types de mesures indique que la durée des sources d'EA est plus courte pour les PE les plus cristallins, contrairement à ce que la durée des signaux d'EA laisse penser.

Le fait que la fréquence moyenne des signaux d'EA soit très semblable pour l'ensemble des PE peut signifier que soit la signature acoustique est quasi identique pour les différents mécanismes soit ces derniers présentent réellement des contenus fréquentiels différents mais qui sont entièrement gommée par la réponse des capteurs. Dans ce dernier cas, la distinction des différents mécanismes par le contenu spectral semble être impossible. Par conséquent, il semble plus judicieux de travailler avec l'énergie des signaux.

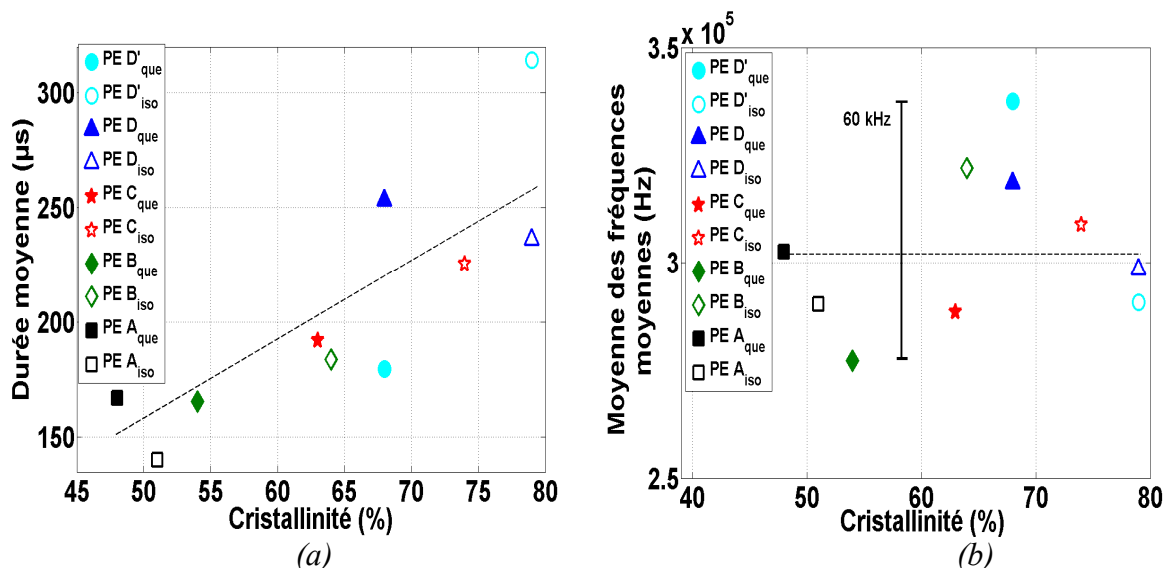


Figure.IV.16. (a) Durée moyenne et (b) moyenne des fréquences moyennes des signaux d'EA collectés lors des essais en fonction de la cristallinité des PE. Les lignes pointillées montrent les tendances.

4.2.2. Énergie

L'énergie moyenne et l'énergie maximale des signaux d'EA augmentent significativement avec le taux de cristallinité (Figure.IV.17.a et b). En effet, l'énergie moyenne pour les différents PE s'étend de 10 aJ pour le PE A_{que} à 330 aJ pour le PE D_{iso}, tandis que l'énergie maximale est d'environ 130 aJ pour le PE A_{que} et est environ 500 fois plus élevée pour le PE D_{iso} (66 000 aJ). L'énergie maximale des PE de cristallinité comprise entre 51 % et 74 % s'étend sur environ une décade (entre 400 aJ et 9000 aJ). L'augmentation de l'énergie des signaux peut s'expliquer à la fois par une durée plus longue des signaux mais aussi par des événements microstructuraux plus nombreux. L'écart-type des énergies moyennes augmente avec la cristallinité et équivaut à entre 2 et 6 fois la valeur de l'énergie moyenne. La Figure.IV.17.c représente la distribution de l'énergie pour 3 des PE étudiés (PE A_{que}, PE B_{que}, et PE D_{que}). Nous constatons que la plupart des

signaux ont une énergie faible (inférieure à 10 aJ) et qu'un faible nombre de signaux présente une énergie élevée. La présence de quelques signaux plus énergétiques pour les PE les plus cristallins engendre donc une augmentation de l'énergie moyenne. De plus, la forme de cette distribution est similaire pour l'ensemble des PE. Notons également que la présence de signaux plus énergétiques pour les PE les plus cristallins conduit à une augmentation de la moyenne de l'énergie avec le taux de cristallinité.

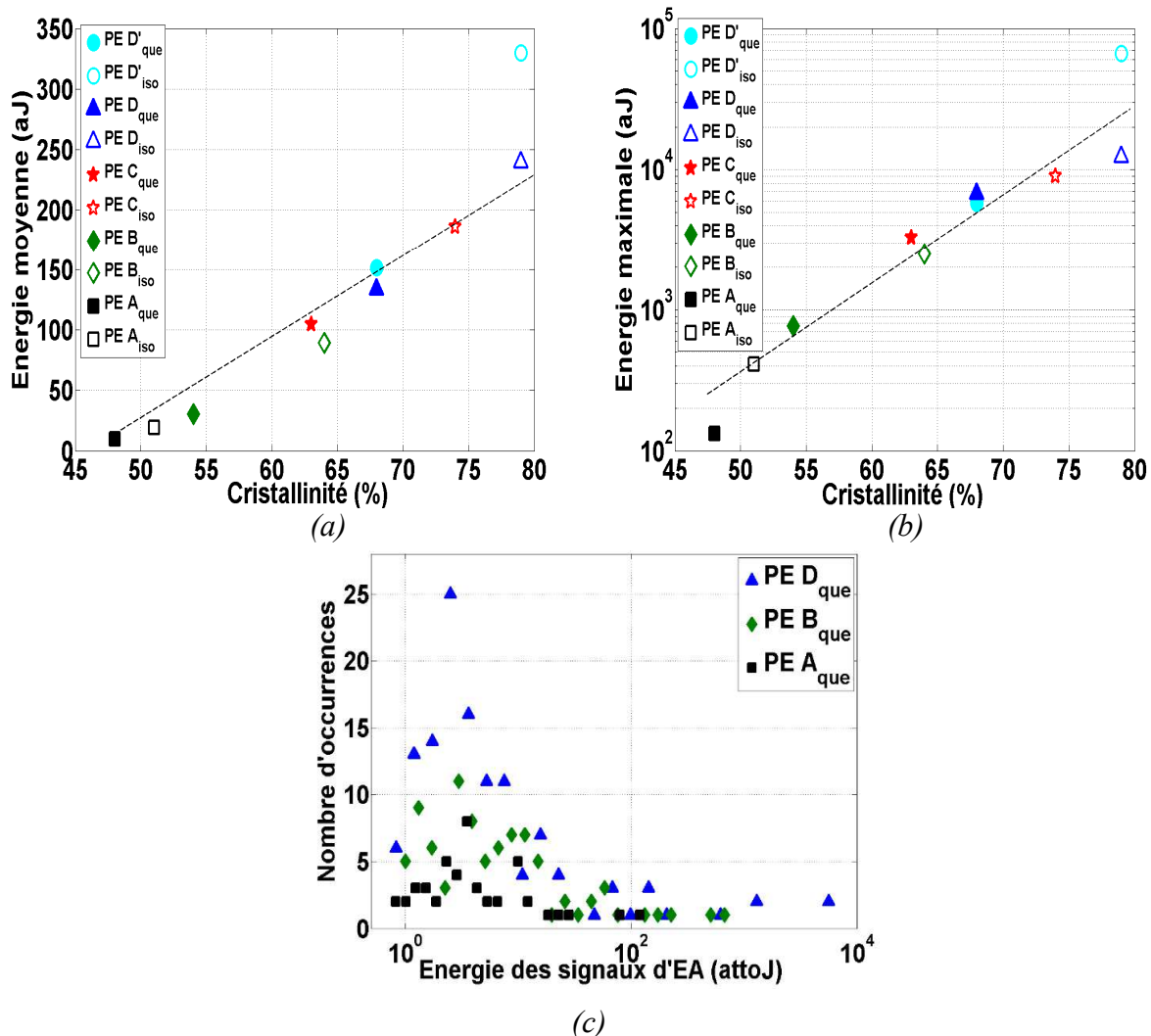


Figure.IV.17. Énergie (a) moyenne et (b) maximale des signaux d'EA en fonction du taux de cristallinité des PE. Les lignes pointillées indiquent les tendances. (c) Distribution du nombre de signaux d'EA en fonction de leur énergie pour 3 PE et 6 essais de traction chacun.

L'énergie des signaux décroît exponentiellement lors de leur propagation entre la source et les capteurs. Cette décroissance de l'énergie dépend directement du coefficient d'atténuation du matériau qui, dans le cas des PE, dépend du taux de cristallinité. Afin de déterminer si l'augmentation de l'énergie moyenne $E_{moyenne}$ (Figure.IV.17.a) des signaux d'EA en fonction de la cristallinité est uniquement causée par l'effet de la propagation, nous proposons de corriger l'énergie par l'atténuation. Cette correction a été prise en compte en supposant que, pour l'ensemble des PE, les sources d'EA ont eu lieu en moyenne aux mêmes positions, c'est-à-dire au centre des éprouvettes, distantes d'environ 6 mm des capteurs et que leur contenu fréquentiel est identique. L'atténuation a été corrigée en utilisant les données de la Figure.III.10. À partir de ces hypothèses, nous pouvons donc estimer l'énergie moyenne E_0 des sources d'EA (Eq.IV. 5), comme le montre la Figure.IV.18.

$$E_0 = \frac{E_{moyenne}}{e^{-\beta x}} \quad (Eq.IV. 5)$$

Nous constatons que l'énergie moyenne estimée des sources E_0 augmente avec le taux de cristallinité, ce qui signifie que l'énergie des sources dépend directement de la cristallinité. Par conséquent, nous pouvons en déduire que l'augmentation de l'énergie moyenne des signaux est directement liée à une libération d'énergie acoustique plus élevée lorsque le taux de cristallinité du matériau augmente.

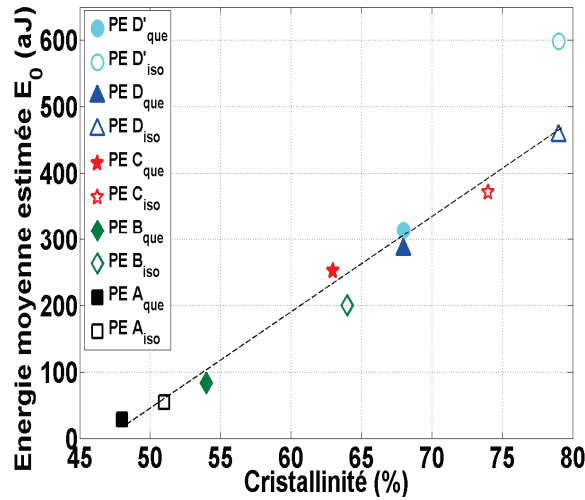


Figure.IV.18. Énergie moyenne estimée E_0 des sources d'EA calculée à partir des énergies des signaux après correction de l'atténuation en fonction du taux de cristallinité des PE.

Afin d'évaluer la part de l'énergie élastique stockée dans les matériaux libérée sous forme d'énergie acoustique, nous pouvons comparer l'énergie moyenne estimée E_0 des sources d'EA à celle de l'énergie élastique stockée, notée E_{elas} , pour l'ensemble des PE. L'énergie élastique stockée a été calculée à partir de la contrainte nominale macroscopique σ_{macro} des signaux, le volume V et le module d'Young E :

$$E_{elas} = \frac{\sigma_{macro}^2 V}{2E} \quad (Eq.IV. 6)$$

Dans ce calcul, nous avons utilisé la contrainte macroscopique, déterminée à partir des courbes de traction, étant la seule contrainte accessible dans nos mesures. Il aurait été plus pertinent d'utiliser la contrainte locale associée à l'instant où l'énergie acoustique est libérée par le matériau, cependant nous n'avons pas accès à cette contrainte locale. Chaque signal d'EA est donc associé à une contrainte nominale macroscopique correspondant à l'instant où celui-ci a été détecté. À partir de σ_{macro} , nous avons effectué 2 calculs légèrement différents de l'énergie élastique stockée pour chaque PE :

- Le premier consiste à calculer directement E_{elas} en utilisant pour cela la contrainte nominale macroscopique associée à chacun des signaux d'EA détectés lors des essais (Figure.IV.19);

- Le second consiste à sommer la totalité des contraintes nominales macroscopiques associées aux signaux enregistrés au cours de l'ensemble des essais, que nous avons divisé par le nombre total de signaux. Cette opération nous donne ainsi la contrainte nominale macroscopique moyenne à laquelle les signaux d'EA ont été détectés au cours des essais (Figure.IV.20).

En ce qui concerne le volume V , son choix est également délicat. En effet, comme nous l'avons déjà expliqué, chaque signal d'EA est très probablement la contribution de plusieurs mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissant simultanément et en cascade au sein du matériau. Par conséquent, il est difficile de déterminer le volume dans lequel l'énergie élastique a été emmagasinée avant qu'une partie de celle-ci soit libérée sous forme d'énergie acoustique. De même, les dimensions des sources d'EA sont inconnues ainsi que leur variation avec la cristallinité du matériau. Par conséquent, nous avons fait le choix de considérer un volume identique pour tous les PE : le volume total initial de la zone utile des éprouvettes.

La Figure.IV.19.a représente directement sur la courbe de traction les signaux d'EA, détectés lors de 6 essais, ainsi que l'énergie élastique stockée associée à chacun des signaux, en fonction de la déformation pour le PE D_{que}. L'énergie élastique stockée cumulée pour l'ensemble des signaux collectés lors de 6 essais de traction pour 3 PE étudiés (PE A_{que}, PE B_{que}, et PE D_{que}) est représentée en fonction de la déformation sur la Figure.IV.19.b. Nous remarquons que cette énergie augmente tout au long des essais et croît avec la cristallinité des PE. Le comportement de cette énergie cumulée est similaire à celui du nombre de signaux enregistrés au cours des essais (Figure.IV.14), c'est-à-dire une forte croissance en début d'essai jusqu'aux environs de 50 % de déformation, suivi d'une faible augmentation jusqu'à 150 % puis une nouvelle croissance en fin d'essai.

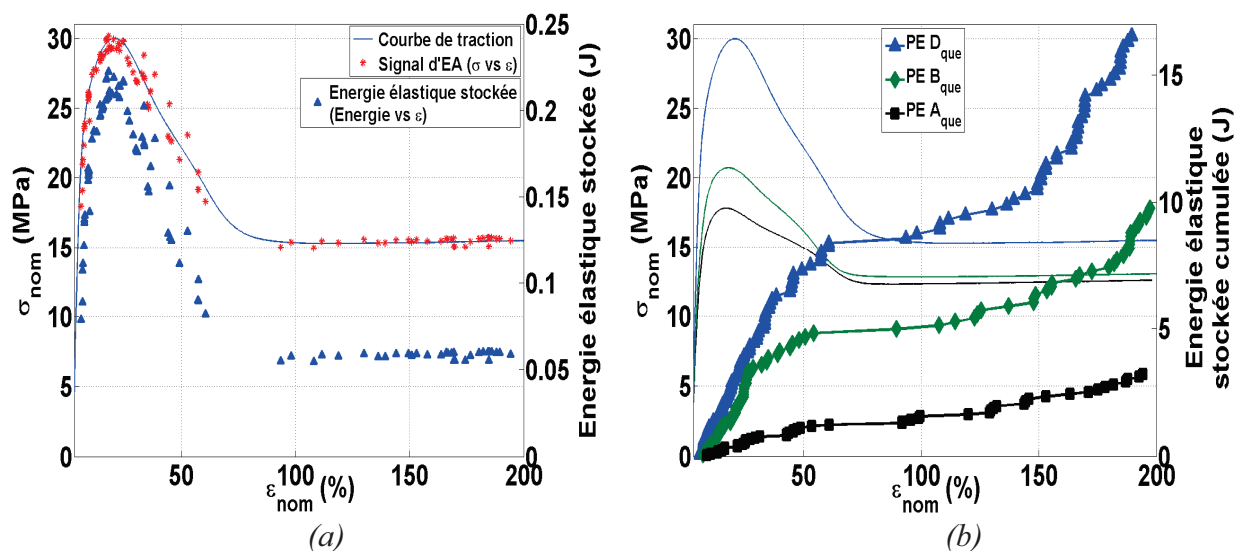


Figure.IV.19. (a) Energie élastique stockée associée à chaque signal d'EA détecté lors de 6 essais de traction sur des PE D_{que} en fonction de la déformation et (b) énergie élastique stockée cumulée de l'ensemble des signaux d'EA détectés lors de 6 essais de traction sur le PE A_{que}, PE B_{que}, et PE D_{que} en fonction de la déformation.

La Figure.IV.20.a montre que l'énergie élastique stockée dans l'éprouvette croît avec le taux de cristallinité des PE mais tend à se stabiliser pour les PE les plus cristallins, à l'exception du PE D_{iso}. Cette saturation de l'énergie élastique stockée pourrait s'expliquer par le fait que les cristaux sont en contact pour les PE les plus cristallins, ce qui aurait pour influence une augmentation plus importante du volume dans lequel l'énergie élastique est stockée avant que celle-ci soit libérée sous forme d'énergie acoustique.

Le rapport entre l'énergie élastique stockée E_{elas} et l'énergie moyenne estimée E_0 des sources d'EA est présenté sur la Figure.IV.20.b. Nous remarquons que celui-ci augmente fortement avec le taux de cristallinité, ce qui signifie qu'une plus grande part de l'énergie élastique stockée, dans les PE les plus cristallins, est libérée lors de l'apparition des événements microstructuraux. La fraction d'énergie élastique stockée, dans les PE les plus cristallins, libérée sous forme d'énergie acoustique est environ 20 fois supérieure à celle du PE le moins cristallin. De plus, compte-tenu de nos hypothèses de calcul, ce rapport est très faible ce qui montre que c'est une infime fraction de l'énergie élastique stockée qui est libérée sous la forme d'énergie acoustique au cours des essais.

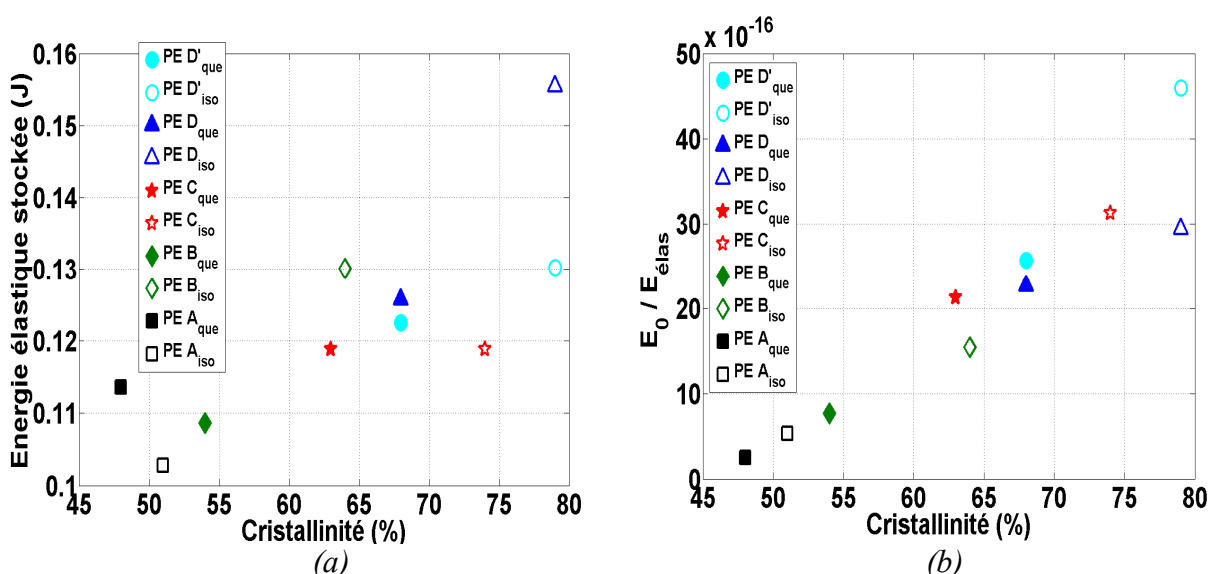


Figure.IV.20. (a) Energie élastique stockée dans l'éprouvette avant libération d'une partie de celle-ci sous forme d'énergie acoustique et (b) rapport entre l'énergie moyenne estimée E_0 et l'énergie élastique stockée.

4.3. LOCALISATION

Nous avons montré précédemment que des signaux d'EA ont pu être localisés (événements d'EA) sur les éprouvettes lors des essais réalisés à la vitesse de déformation de $3.3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. Dans cette partie, nous analyserons la part des événements d'EA pour les différents PE étudiés, ainsi que leurs caractéristiques par rapport aux signaux non localisés.

La part d'événements d'EA enregistrés lors des essais pour l'ensemble des PE est relativement faible (Figure.IV.21.a). Néanmoins, le pourcentage des événements d'EA augmente avec le taux de cristallinité. En effet, environ 4 % des signaux d'EA détectés, pour le PE A_{que} et le PE B_{iso}, ont été localisés, tandis que ce pourcentage est de 37 % pour le PE D_{iso}. Les autres PE ont une proportion d'événements d'EA comprise entre 10 % et 30 % de l'ensemble des signaux d'EA collectés au cours des essais.

Cette augmentation du pourcentage d'événements d'EA se traduit par la détection d'un plus grand nombre moyen de signaux d'EA localisés par essai en fonction de la cristallinité (Figure.IV.21.b). En effet, pour l'ensemble des PE A et PE B (trempés et « isothermes »), en moyenne moins d'un événement d'EA est enregistré lors des essais. L'acquisition d'un événement d'EA pour les PE A_{que} et le PE B_{iso} est rare, tandis que pour les PE B_{que} et PE A_{iso} en moyenne un peu moins d'un événement d'EA est enregistré lors des essais. Les autres PE présentent entre 1 et 3 événements d'EA en moyenne par essai, à l'exception du PE D'_{iso} dont le nombre moyen d'événements est relativement plus élevé : un peu plus de cinq par essai.

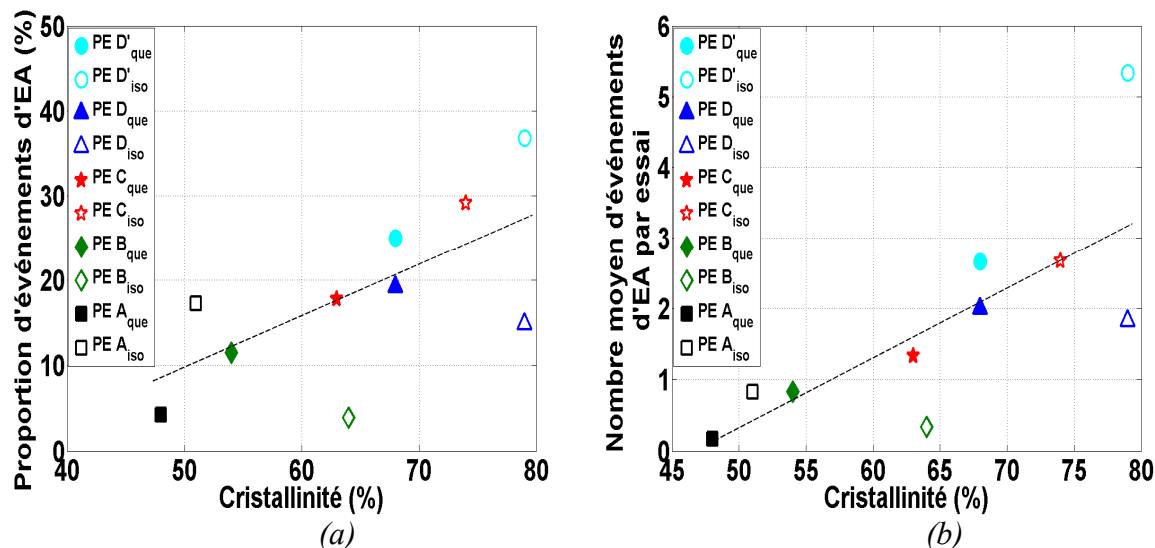


Figure.IV.21. Événements d'EA (a) proportion en pourcentage et (b) nombre moyen par essai en fonction de la cristallinité des PE étudiés. Les lignes pointillées montrent les tendances.

La localisation de signaux d'EA, nous permet d'avoir une idée approximative de la position des sources d'EA sur les éprouvettes de traction au cours des essais. Ces positions peuvent être déterminées à partir des temps d'arrivées des signaux sur chacun des capteurs et sont représentées pour quatre PE sur les Figure.IV.22.a-d. Les positions des événements d'EA sont ici montrées pour 6 essais sur les PE D_{que}, le PE B_{que} et le PE A_{iso} et pour 3 essais sur le PE D'_{iso}.

La distance initiale entre les capteurs est d'environ 12 mm et le déplacement du capteur du haut sur les éprouvettes est représenté sur les figures par la ligne pointillée noire. Pour déterminer la position des sources d'EA, nous avons supposé que l'ensemble de l'allongement des matériaux n'a lieu qu'entre les capteurs. Nous constatons que la majorité des signaux est localisée pour des faibles taux de déformations ($\epsilon_{nom} < 50\%$) et en particulier autour du seuil de plasticité, tandis que l'enregistrement d'événements est rare aux grandes déformations. Nous remarquons aussi que la position des événements d'EA n'est jamais située à plus de 6 mm environ (10 mm pour le PE D'_{iso}) d'un des capteurs.

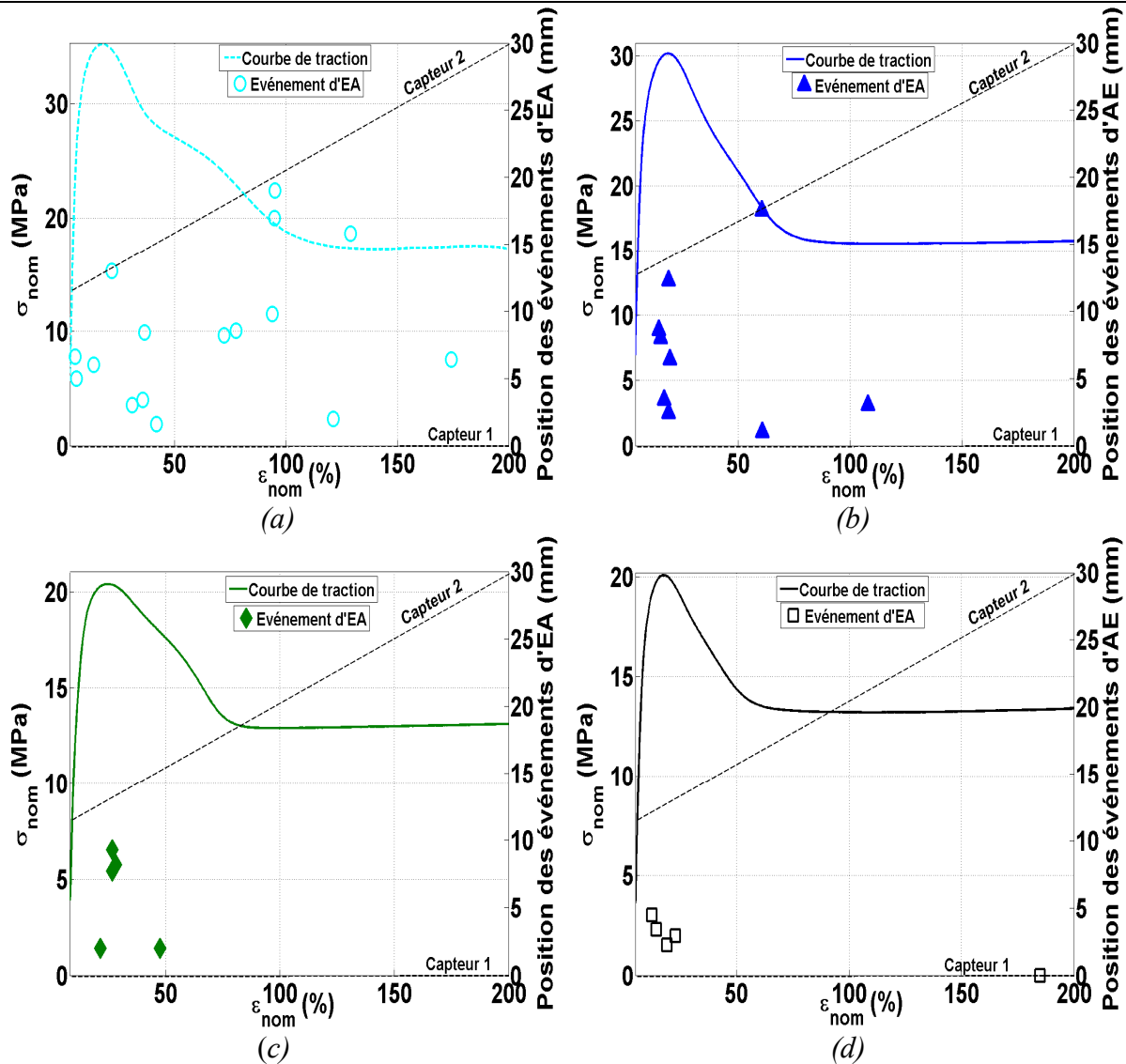


Figure.IV.22. Positions des événements d'EA lors de l'ensemble de nos essais de traction sur (a) le PE D'iso, (b) le PE D'que, (c) le PE B'que et (d) le PE A'iso.

Les caractéristiques des événements d'EA peuvent aussi être différenciées de celles des signaux non localisés, en particulier pour l'amplitude moyenne et l'énergie moyenne (Figure.IV.23.a et b). À l'exception des PE A'que et PE A'iso (pour lesquels le nombre d'événements est le plus faible), nous constatons que l'énergie moyenne des événements d'EA, comprise entre 150 et 1000 aJ, est systématiquement supérieure à celles des signaux non localisés, comprise entre 8 et 80 aJ.

De même, l'amplitude moyenne des événements d'EA est, pour l'ensemble des PE, toujours supérieure à celles des signaux non localisés (Figure.IV.23.b). L'amplitude moyenne des événements d'EA est comprise entre 0,08 et 0,18 V environ, tandis que celle des signaux non localisés est comprise entre 0,05 et 0,09 V.

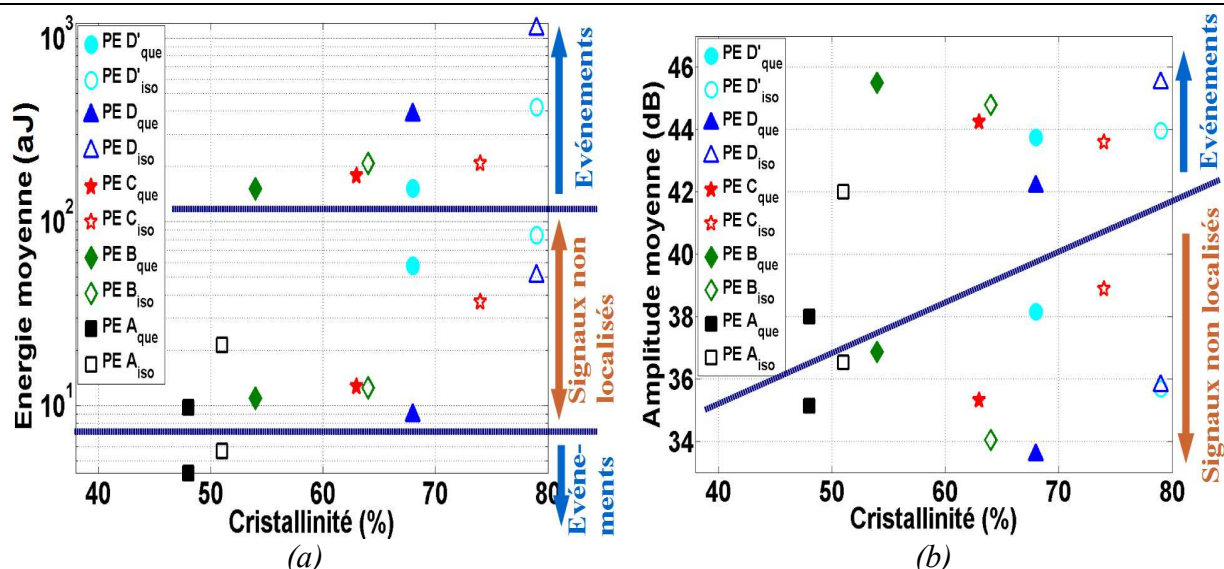


Figure.IV.23. Comparaison de (a) l'énergie moyenne et (b) l'amplitude moyenne des événements d'EA et les signaux non localisés en fonction du taux de cristallinité des PE.

4.4. INITIATION DE L'ACTIVITE ACOUSTIQUE

L'activité acoustique démarre systématiquement avant le seuil de plasticité pour l'ensemble des PE. Ces signaux sont associés aux prémices de la plasticité et de l'endommagement des matériaux et montrent que la technique d'EA est suffisamment sensible pour détecter l'énergie acoustique libérée par les micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement à ces très faibles déformations. Nous entreprenons donc l'analyse des caractéristiques de l'initiation de l'activité acoustique en fonction du taux de cristallinité.

L'initiation de l'activité acoustique avant le seuil de plasticité dépend de la cristallinité. En effet, comme le montre la Figure.IV.24, le pourcentage de signaux collectés avant le seuil de plasticité augmente avec la cristallinité.

Nous constatons que pour le PE A_{que} le pourcentage de signaux d'EA enregistrés avant le seuil de plasticité est environ de 10 % de la totalité des signaux collectés au cours des essais. Ce pourcentage s'élève à environ 40 % pour les PE les plus cristallins (PE C_{iso}, PE D_{iso} et PE D'_{iso}). À l'exception du PE B_{iso} dont le pourcentage de signaux détectés avant le seuil est proche de 55 % de la totalité des signaux, cette proportion augmente de 22 % à 38 % pour les autres PE. Le taux de cristallinité a donc un impact sur l'activité acoustique enregistrée avant le seuil de plasticité.

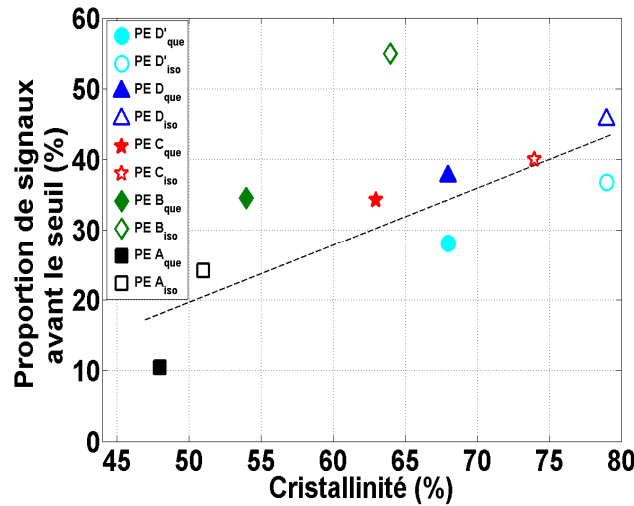


Figure.IV.24. Proportion de signaux d'EA enregistrés avant le seuil de plasticité en fonction du taux de cristallinité des PE étudiés. La ligne pointillée montre la tendance.

À partir de la détection de signaux d'EA avant le seuil de plasticité, nous pouvons définir un critère correspondant à l'initiation de la plasticité et de l'endommagement pour chaque PE. Deux critères ont été définis à partir des contraintes auxquelles les signaux ont été collectés avant le seuil de plasticité.

Le premier critère, noté $IniP$, est le rapport entre la contrainte nominale macroscopique moyenne, à laquelle les signaux d'EA ont été enregistrés avant le seuil de plasticité, notée $\bar{\sigma}_{\text{signaux avant le seuil}}$, et la moyenne des contraintes nominales mécaniques issus des courbes de traction, notée $\bar{\sigma}_{\text{max}}$:

$$IniP = \frac{\bar{\sigma}_{\text{signaux avant le seuil}}}{\bar{\sigma}_{\text{max}}} \quad (Eq.IV. 7)$$

Le second critère, noté $IniP'$, est le rapport entre la moyenne des contraintes nominales macroscopiques à laquelle le premier signal d'EA a été enregistré avant le seuil de plasticité pour l'ensemble des essais, notée $\bar{\sigma}'_{\text{premier signal avant le seuil}}$, et $\bar{\sigma}_{\text{max}}$:

$$IniP' = \frac{\bar{\sigma}'_{\text{premier signal avant le seuil}}}{\bar{\sigma}_{\text{max}}} \quad (Eq.IV. 8)$$

Les Figure.IV.25.a et b montrent les valeurs de $IniP$ et $IniP'$ en fonction du taux de cristallinité. Nous constatons que les valeurs de $IniP$ et $IniP'$ tendent chacune à diminuer avec la cristallinité. En outre, les valeurs de $IniP$ sont plus élevées que celles de $IniP'$ car ce dernier critère tient uniquement compte du premier signal enregistré avant le seuil de plasticité au cours des essais.

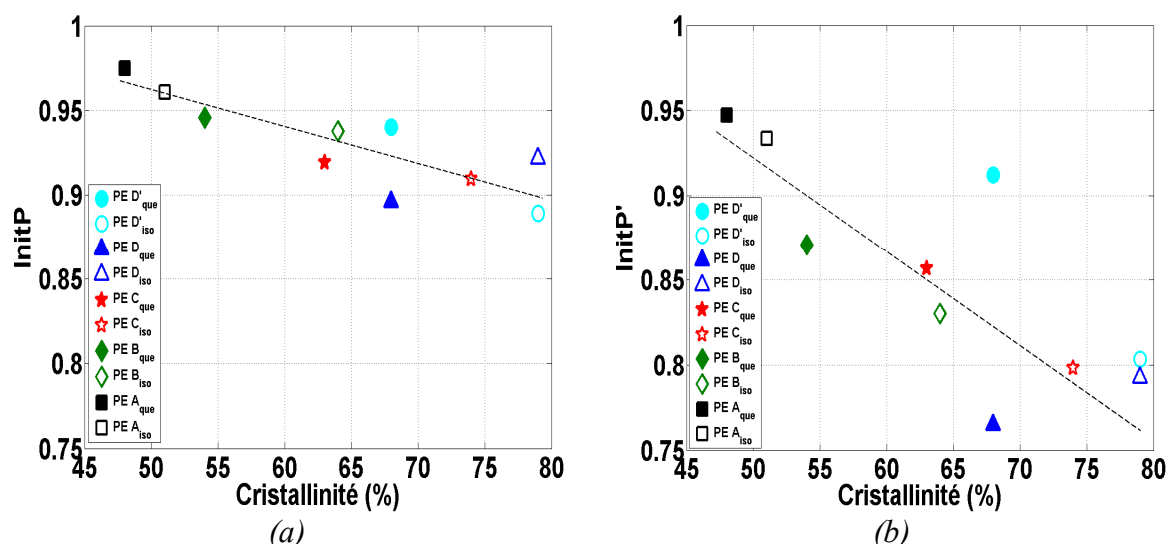


Figure.IV.25. Évolutions des valeurs de (a) $InitP$ et (b) $InitP'$ en fonction du taux de cristallinité des PE étudiés. Les lignes pointillées indiquent les tendances.

Ainsi, nous montrons que, localement, des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement s'initient plus tôt lorsque le taux de cristallinité augmente. En effet, l'initiation de l'activité acoustique est respectivement aux alentours de 90 % et 80 % de la contrainte macroscopique maximale pour $IniP$ et $IniP'$ pour les PE les plus cristallins, tandis qu'elle s'initie à l'approche du seuil de plasticité pour les PE les moins cristallins, aux environs de 95 % de la contrainte maximale. Cette initiation de plus en plus précoce de l'activité acoustique avec le taux de cristallinité peut s'expliquer par l'apparition de mécanismes avant le seuil de plasticité, comme cela est particulièrement le cas pour les PE qui se déforment en présence de la cavitation avant le seuil d'écoulement. Outre ce mécanisme, les signaux détectés avant le seuil de plasticité peuvent être corrélés à l'initiation de la transformation martensitique pour l'ensemble des PE. La Figure.IV.26 présente le critère $IniP'$ provenant des données issues de la technique d'EA (représenté avec les différents symboles rattachés aux PE) et provenant du rapport entre la contrainte macroscopique à laquelle s'initie la transformation martensitique mesurée par diffusions des rayons X par Séverine Humbert au cours de sa thèse [HUM09] et la contrainte du seuil de plasticité (représenté avec les croix). Nous notons une forte similitude dans le comportement de $IniP'$ indiquant que la transformation martensitique est un des mécanismes prépondérant dans la libération d'énergie acoustique avant le seuil de plasticité.

Les critères définis permettent de mettre en évidence que des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement s'initient avant le seuil de plasticité. Ainsi, ce dernier, défini à partir de la courbe de traction, n'est pas un indicateur fiable pour définir l'initiation de la déformation plastique et l'endommagement. Ces résultats obtenus par la technique d'EA confirment ceux déjà acquis par Séverine Humbert au cours de sa thèse à l'aide de techniques d'analyses conventionnelles [HUM09].

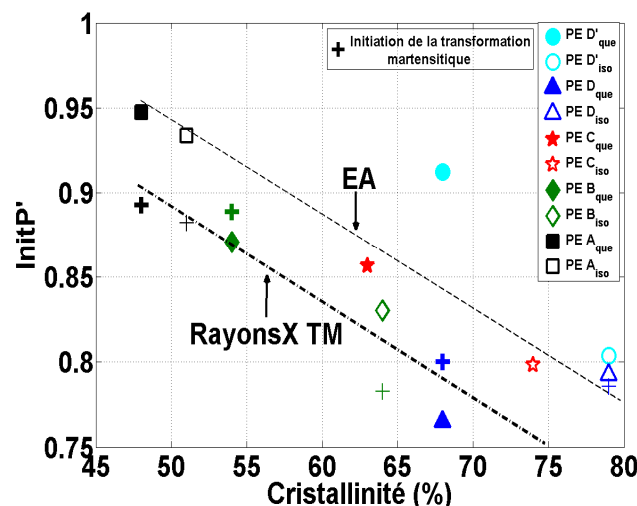


Figure.IV.26. Comparaison de l'initiation de l'activité acoustique et, de la transformation martensitique (TM) (+) déterminée à partir de la technique de diffusion par rayons X [HUM09] en fonction du taux de cristallinité des PE étudiés. Les lignes pointillées indiquent les tendances.

5. ACTIVITE ACOUSTIQUE D'AUTRES POLYMERES SEMI-CRISTALLINS

Afin de vérifier si les comportements vus précédemment sur l'ensemble des PE étudiés sont également observés pour d'autres polymères semi-cristallins, nous avons effectué quelques essais de traction sur un PP et un PVDF instrumentés en EA. Le taux de cristallinité du PP est de 53 % et les dimensions des éprouvettes de traction sont identiques à celles des PE. Le PVDF a un taux de cristallinité de 47 %. En revanche, l'épaisseur des éprouvettes est de 3 mm, plus faible que celle des PE et du PP (6 mm).

5.1. POLYPROPYLENE

Nous avons étudié l'activité acoustique d'un PP lors d'un essai de traction effectué à la vitesse de déformation de $8,3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. La courbe contrainte-déformation nominale et le nombre cumulé de signaux d'EA détectés sont présentés sur la Figure.IV.27.a. Nous constatons que le nombre de signaux collectés est faible (14 signaux), ce qui permet de confirmer que l'activité acoustique des polymères semi-cristallins est modeste. En outre, notons qu'aucun événement d'EA n'a été enregistré au cours de l'essai. Comme pour les PE, l'activité acoustique semble présenter trois phases en fonction de la déformation. En effet, la majorité des signaux est détectée en début d'essai ($< 60 \%$), en particulier nous remarquons que quelques signaux sont enregistrés avant le seuil de plasticité ce qui semble signifier que des mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissent au sein du PP à ces faibles déformations. Aux déformations intermédiaires, un faible nombre de signaux est détecté. Une nouvelle augmentation de l'activité acoustique est observée en fin d'essai ($> 170 \%$). Par conséquent, le modèle fondé sur une évolution de la répartition des sources d'EA sur les éprouvettes au cours de la déformation (Figure.IV.12) semble également se vérifier sur ce PP.

L'énergie des signaux d'EA est présentée sur la Figure.III.27.b. Nous vérifions que l'énergie des signaux est faible, compris entre 1 et 20 aJ. La majorité des signaux ont une énergie de l'ordre de quelques aJ. La fréquence moyenne des signaux est comprise entre 200 et 400 kHz (Figure.III.27.c).

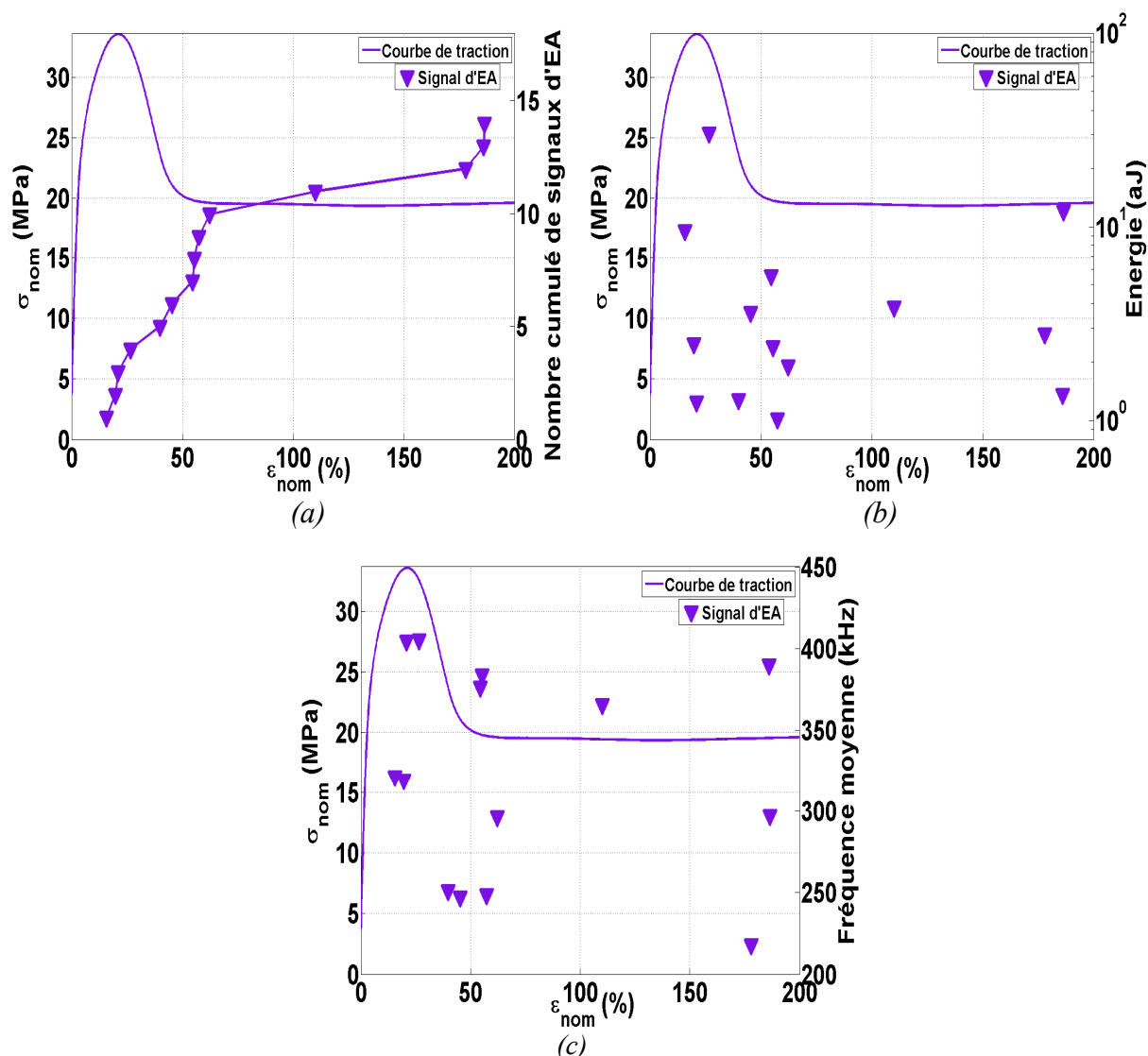


Figure.IV.27. Contrainte et (a) nombre cumulé, (b) énergie et (c) fréquence moyenne des signaux d'EA en fonction de la déformation lors d'un essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $8,3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ sur un PP.

5.2. POLYFLUORURE DE VINYLIDENE

Nous avons également instrumenté en EA des essais de traction effectués aux vitesses de déformation de $8,4 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ et $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ sur des éprouvettes de PVDF. La courbe contrainte-déformation nominale et l'énergie des signaux d'EA détectés sont présentées sur les Figure.IV.28.a et b pour les deux vitesses de déformation imposées au matériau. Nous observons une très faible activité acoustique au cours de la déformation plastique et de l'endommagement du matériau pour les deux vitesses de déformation étudiées. Ce faible nombre de signaux détectés est la conséquence de la forte atténuation du PVDF liée en partie au fait que l'épaisseur des éprouvettes est faible. De plus, l'énergie des signaux détectés n'est que de quelques aJ. Pour l'essai de traction réalisé à la vitesse de déformation de $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, nous constatons une activité acoustique plus élevée lors de la rupture du matériau aux environs de 26 % de déformation. Les signaux acquis lors de la rupture sont plus énergétiques, et peuvent atteindre une énergie de 10^6 aJ . Cependant, cette faible activité acoustique ne nous permet pas de comparer et vérifier les comportements constatés sur les PE et le PP.

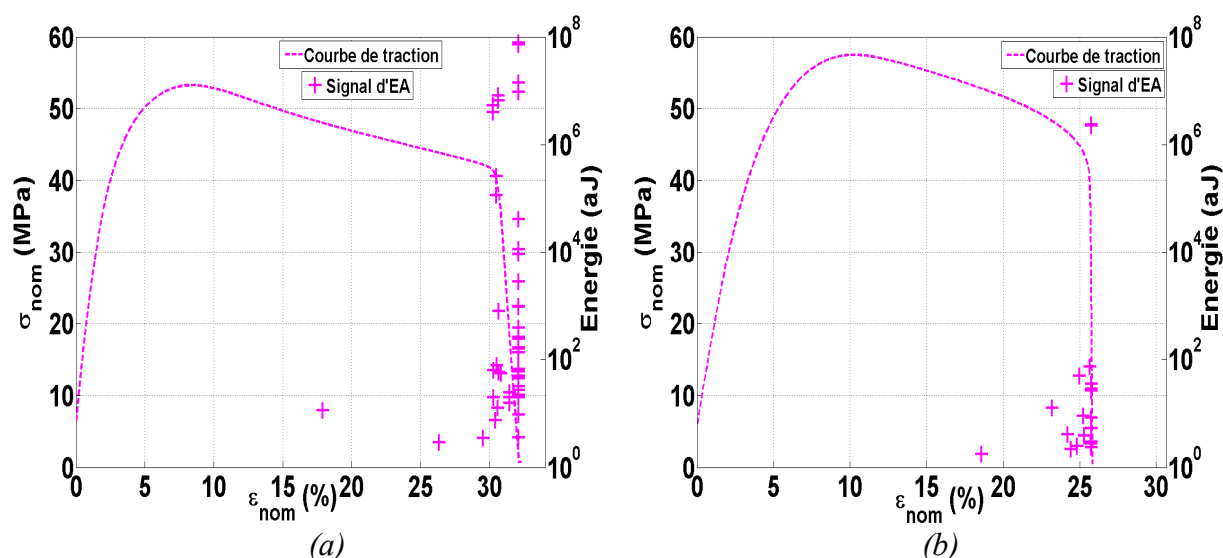


Figure.IV.28. Contrainte et énergie des signaux d'EA en fonction de la déformation lors d'essais de traction réalisés à la vitesse de déformation de (a) $8,4 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ et (b) $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ sur des éprouvettes de PVDF.

6. CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons utilisé la technique d'EA afin d'obtenir plus d'informations sur l'initiation des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement de polymères semi-cristallins. Pour cela, nous avons analysé, lors d'essais de traction uniaxiale, l'activité acoustique de plusieurs PE possédant des paramètres microstructuraux variés, d'un PP et d'un PVDF. Cependant, la détection de signaux d'EA est difficile de par la forte atténuation des ondes US dans ces matériaux.

Des observations préliminaires, sur les PE, ont montré que (i) l'activité acoustique est très faible, ce qui rend complexe une analyse statistique des signaux, et que (ii) de nombreuses sources parasites peuvent participer à la libération d'énergie acoustique, ce qui implique que l'origine des signaux enregistrés demeure incertaine. Pour cela, nous avons développé une méthodologie fondée sur la comparaison de l'activité acoustique de deux géométries différentes d'éprouvettes (éprouvette haltère et « anti-éprouvette ») afin de déterminer l'origine des signaux collectés lors des essais. En particulier, nous avons cherché à savoir si des signaux peuvent être associés à la déformation plastique et à l'endommagement du matériau. Grâce à cette méthodologie, nous avons mis en évidence que peu de signaux parasites d'EA sont détectés lors des essais sur éprouvettes haltères. Ce résultat montre que la majorité des signaux enregistrés provient bien du matériau, et que la technique d'EA est suffisamment sensible pour collecter une partie des signaux issus de mécanismes de plasticité et d'endommagement.

Les conditions expérimentales des essais ont une importance sur l'activité acoustique. En effet, une augmentation de l'activité acoustique est observée avec la vitesse de déformation. De même, les signaux détectés sont associés à des énergies acoustiques plus élevées. La majorité de ces signaux est enregistrée autour du seuil de plasticité pour l'ensemble des vitesses de déformation réalisées. La localisation d'une petite part des signaux d'EA a été possible à grande vitesse de déformation, certifiant que les signaux sont majoritairement originaires de la déformation plastique et de l'endommagement du matériau.

Nous avons aussi mis en évidence que l'activité acoustique présente trois phases distinctes au cours des essais. Une première phase est caractérisée par une activité acoustique relativement élevée. Au cours de cette phase, des signaux et des événements d'EA (signaux localisés) sont enregistrés avant le seuil de plasticité montrant que des mécanismes de plasticité et/ou d'endommagement libèrent de l'énergie acoustique aux faibles déformations. Lors de la deuxième phase, très peu de signaux d'EA sont enregistrés. Ce changement de comportement est associé à une évolution de la distribution spatiale des sources qui est de plus en plus étendue sur les matériaux de par la formation de la striction. Enfin, au cours de la dernière phase, nous remarquons une nouvelle augmentation du nombre de signaux détectés liée à une réduction de la distance entre les sources d'EA et les capteurs avec l'avancée de la striction.

L'étude de l'influence de la microstructure sur l'activité acoustique a également été entreprise à l'aide de PE possédant des taux de cristallinité variés et pour lesquels différents mécanismes de formation de la cavitation ont lieu lors de leur déformation. Nous avons constaté une augmentation significative du nombre de signaux détectés ainsi que d'événements d'EA, avec la cristallinité. Par ailleurs, nous avons constaté que l'énergie et l'amplitude des événements d'EA sont plus élevées que celles des signaux non localisés. L'énergie moyenne des signaux détectés augmente avec la cristallinité. Nous avons aussi vu que la part d'énergie élastique libérée sous forme d'énergie acoustique augmente sensiblement avec la cristallinité. De plus, l'initiation de l'activité acoustique est plus précoce lorsque la cristallinité augmente, en particulier pour les PE qui se déforment en présence de cavitation avant le seuil de plasticité. L'enregistrement de signaux d'EA avant le seuil de plasticité peut également être corrélé à l'initiation de la transformation martensitique.

Malgré une faible activité acoustique, les résultats obtenus montrent que la technique d'EA est assez sensible pour détecter des signaux issus de micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement dans les PE. Cependant, une corrélation entre les signaux d'EA et les mécanismes, et une analyse statistique restent difficiles. Néanmoins, les données collectées indiquent que des mécanismes de plasticité et d'endommagement sont clairement activés avant le seuil de plasticité qui est généralement considéré comme le moment à partir duquel la plasticité s'initie d'un point de vue macroscopique. Nous avons donc pu définir de manière quantitative un critère de plasticité sur l'amorçage de micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement.

Nous avons pu vérifier que l'activité acoustique d'un PP et d'un PVDF est également modeste, et que les signaux enregistrés présentent une énergie faible. L'activité acoustique du PP s'initie avant le seuil de plasticité indiquant que des mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissent au sein du matériau à ces faibles déformations. Le nombre de signaux détectés au cours de l'essai suit le même comportement que pour les PE. Dans le cas du PVDF, une très faible activité acoustique est observée avant la rupture du matériau ce qui peut en grande partie s'expliquer par sa forte atténuation.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

L'objectif de cette thèse était l'étude de l'initiation de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins au cours d'essais de traction à l'aide de techniques d'évaluation non destructives fondées sur la propagation et la détection d'ondes acoustiques. Plus exactement, nous avons cherché à acquérir une meilleure compréhension des prémices des mécanismes mis en jeu à l'échelle locale lors de la transformation progressive de la structure sphérolitique en structure fibrillaire au cours de l'écoulement plastique. Pour cela, nous nous sommes attachés à établir l'influence des différents mécanismes sur la propagation des ondes ultrasonores (US) d'une part et sur l'activité acoustique générée d'autre part. Nous avons mené nos investigations sur différents polymères semi-cristallins : des Polyéthylènes (PE) présentant notamment des taux de cristallinité variés, d'un Polypropylène (PP) et d'un Polyfluorure de vinylidène (PVDF). Ces travaux ont été réalisés via deux méthodes d'analyses *in situ* complémentaires : (i) la technique de contrôle US qui consiste à suivre l'évolution des paramètres d'ondes issues d'une source entièrement contrôlée, et (ii) la technique d'émission acoustique (EA) qui réside dans la détection de signaux provenant des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement des matériaux au cours d'essais de traction. Ainsi, nous nous sommes attelés à répondre aux nombreuses interrogations, concernant l'utilisation de ces méthodes, posées à la fin du chapitre bibliographique.

Propagation des ondes US dans les matériaux sains

Les paramètres des ondes US dépendent directement des caractéristiques du milieu de propagation ainsi il est nécessaire d'avoir une bonne connaissance de leur comportement dans les matériaux sains.

Plusieurs facteurs déterminent le type d'onde se propageant dans un matériau. Parmi ceux-ci, nous pouvons noter les caractéristiques de la source, la fréquence des ondes générées ou encore les dimensions de la structure. Dans le cadre de nos travaux, nous nous sommes intéressés à la propagation des ondes guidées et des ondes de volume dans la zone utile des éprouvettes de traction. Nous avons vérifié que l'atténuation US dans les polymères semi-cristallins étudiés est élevée et peut être essentiellement attribuée à la dissipation des mouvements vibratoires en chaleur car le phénomène de diffusion y est négligeable. Nos mesures ont également mis en évidence la dispersion d'atténuation pour les ondes guidées. Nous avons également vérifié que l'atténuation des ondes transversales est plus élevée que celles des ondes longitudinales. L'étude de la propagation des ondes guidées le long de la zone utile des éprouvettes a révélé une importante modification des paramètres des ondes lorsque la distance parcourue augmente, en particulier pour l'énergie qui décroît exponentiellement avec la distance. Nous avons aussi mis en évidence qu'une réduction homogène de l'épaisseur des matériaux engendre une augmentation significative de l'atténuation montrant ainsi l'influence de la géométrie des éprouvettes sur la propagation des ondes. Enfin, la microstructure du matériau joue également un rôle important sur la propagation des ondes. En effet, l'atténuation des ondes diminue significativement lorsque le taux de cristallinité augmente. Ce comportement s'explique par le fait que lorsque la cristallinité augmente les ondes US « voient » un milieu contenant une proportion de phase cristalline plus importante pour laquelle l'atténuation est plus faible que celle de la phase amorphe.

Influence des mécanismes de plasticité et d'endommagement sur la propagation des ondes US

Au cours d'un essai de traction, de nombreux mécanismes de plasticité et d'endommagement impactant la propagation des ondes apparaissent au sein des matériaux étudiés.

Dans le domaine de déformation élastique, une faible évolution des paramètres des ondes US est observée signifiant que l'état de la microstructure des matériaux est intact. Dans le domaine de déformation plastique, une modification importante des paramètres (énergie, amplitude, durée, vitesse, ...) est constaté à cause de (i) l'évolution géométrique des éprouvettes sur lesquelles une réduction hétérogène de la section due à la formation d'une striction, et (ii) l'importante diminution des propriétés élastiques des matériaux liées à l'apparition de différents mécanismes de plasticité et d'endommagement. Nous avons montré que l'évolution géométrique seule de l'éprouvette sous l'effet de la formation d'une striction engendre une augmentation significative de l'atténuation des ondes guidées. Dès le seuil de plasticité, l'effondrement de la vitesse et l'augmentation massive de l'atténuation des ondes US sont des indicateurs de la destruction du réseau cristallin qui se fragmente en petits blocs cristallins. Une évolution plus importante des paramètres US (augmentation de l'atténuation et diminution de la vitesse des ondes) est observée lorsque la déformation s'accompagne de la formation de micro-vides au sein des matériaux. Le dépliement et l'orientation des chaînes macromoléculaires de la phase amorphe dans la direction de traction conduit à une évolution de l'anisotropie des matériaux, et les propriétés intrinsèques de la phase amorphe tendent progressivement vers celles du cristal. A l'inverse des autres mécanismes, ce dernier favorise la propagation des ondes impliquant une diminution de l'atténuation.

Activité acoustique

Compte-tenu de la forte atténuation dans les polymères semi-cristallins, nous avons supposé que les signaux d'EA détectés ne peuvent pas être issus d'une seule et unique source isolée mais d'une avalanche de sources à l'échelle locale permettant l'addition partielle de l'amplitude des ondes générées grâce au phénomène d'interférences.

Peu de signaux d'EA sont détectés lors des essais de traction sur les polymères semi-cristallins étudiés. De plus, ces signaux se caractérisent par une faible énergie acoustique. Cependant, de nombreuses sources d'EA ont été identifiées dont certaines sont parasites telles que du bruit ou des glissements du montage expérimental. Ainsi, la détermination de l'origine des signaux est difficile, en particulier par le fait que leur localisation n'est pas toujours possible. Par conséquent, nous avons développé une méthodologie fondée sur la comparaison de l'activité acoustique de deux géométries différentes d'éprouvettes (haltère et « anti-éprouvette ») afin de différencier les signaux provenant de sources parasites de ceux originaires des mécanismes de plasticité et d'endommagement du matériau. Grâce à cette méthodologie, nous avons pu établir que la majorité des signaux d'EA proviennent effectivement de la déformation plastique et de l'endommagement du matériau lors d'un essai de traction.

Cette vérification, nous a permis de montrer qu'une augmentation de la vitesse de déformation du matériau engendre une activité acoustique plus importante. Ce comportement est causé par une occurrence plus grande des mécanismes de plasticité et d'endommagement conduisant à une quantité d'énergie acoustique libérée plus élevée. En outre, nous avons pu localiser un certain nombre de signaux d'EA permettant de conclure que les signaux sont effectivement majoritairement originaires des mécanismes apparaissant au sein du matériau. Cependant, une corrélation directe entre les signaux détectés et les mécanismes est très difficile car le nombre de signaux collectés est faible. Cependant, il semblerait que la fragmentation des lamelles cristallines, la cavitation ou encore la transformation martensitique soient toutes trois à l'origine de la libération d'énergie acoustique. De plus, les signaux étant originaires d'une avalanche de sources, il est fort probable que les ondes générées par les différents mécanismes de plasticité et d'endommagement contribuent chacune au signal résultant par l'addition partielle de leur amplitude car ceux-ci apparaissent simultanément au sein du matériau.

L'analyse de l'activité acoustique au cours des essais a révélé que celle-ci présente trois phases distinctes. Lors de leur apparition, les mécanismes de plasticité et d'endommagement sont fortement concentrés au centre de l'éprouvette, ce qui favorise l'addition partielle de l'amplitude des ondes par interférences. Par conséquent, en début d'essai un nombre relativement élevé de signaux d'EA sont enregistrés, et notamment avant le seuil de plasticité. La deuxième phase se caractérise par une faible quantité de signaux collectés que nous avons attribué à une diminution importante du phénomène d'interférences des ondes causée par la formation de la striction engendrant une augmentation de l'étendue spatiale sur laquelle les sources d'EA apparaissent. Enfin, la dernière phase présente une nouvelle augmentation de l'activité acoustique qui s'explique par la diminution de la distance entre les sources d'EA et les capteurs réduisant la perte d'énergie des signaux due à la propagation.

Enfin, nous avons étudié l'influence du taux de cristallinité sur l'activité acoustique. Un nombre plus élevé de signaux d'EA (et d'événements) est collecté au cours des essais lorsque le taux de cristallinité augmente. Ce résultat peut être attribué à une atténuation US plus faible, et à une énergie acoustique libérée plus élevée lorsque le taux de cristallinité du PE augmente. Nous avons montré que la durée des signaux d'EA détectés est plus élevée pour les PE les plus cristallins mais que la durée des sources d'EA semble diminuer lorsque le taux de cristallinité augmente. Nous avons tenté d'estimer l'énergie moyenne des sources d'EA qui augmente avec la cristallinité. Enfin, nous avons montré qu'une infime fraction de l'énergie élastique stockée est libérée sous la forme d'énergie acoustique et que celle-ci augmente significativement avec le taux de cristallinité.

Initiation de l'activité acoustique

L'activité acoustique s'initie pour l'ensemble des PE avant le seuil de plasticité. Par conséquent, des mécanismes de plasticité et d'endommagement apparaissent avant le seuil de plasticité qui est généralement considéré comme l'instant où s'initie la déformation plastique des lamelles cristallines d'un point de vue macroscopique. À partir des données d'EA, nous avons donc défini de manière quantitative un critère de plasticité montrant que les prémices de la déformation plastique et d'endommagement s'initient avant le seuil. Cette initiation de l'activité acoustique est d'autant plus précoce que le taux de cristallinité est élevé et peut être corrélée à la formation de micro-cavités avant le seuil de plasticité pour les PE les plus cristallins. Nous avons également constaté que l'activité acoustique enregistrée avant le seuil de plasticité présente un comportement proche de l'initiation de la transformation martensitique pour les PE étudiés. Ce résultat montre que ce mécanisme libère de l'énergie acoustique avant le seuil de plasticité.

Perspectives

Nos travaux ont permis de faire de nombreuses avancées en ce qui concerne l'emploi de techniques CND fondées sur la propagation et la détection d'ondes acoustiques pour l'étude de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins malgré la forte atténuation des ondes US au sein de ces matériaux. Toutefois, plusieurs points nécessiteraient des études complémentaires.

Nous avons montré que l'atténuation US est plus faible aux basses fréquences. Notre étude s'est focalisée sur la propagation d'ondes US et la détection de signaux d'EA dont la fréquence est comprise dans le domaine classique de l'EA, c'est-à-dire entre 20 kHz et 1,2 MHz. Il serait

intéressant de mener des investigations dans une gamme fréquentielle plus basse afin de vérifier si, le cas échéant, le matériau génère des signaux de très basses fréquences. Toutefois, cette étude nécessiterait la conception de capteurs d'EA spécifiques.

Les paramètres des signaux d'EA détectés sont fortement affectés par le milieu de propagation ainsi que par la réponse du capteur, par conséquent une étude plus approfondie permettrait certainement de déterminer les caractéristiques des sources d'EA, et éventuellement de différencier les différents mécanismes contribuant à la libération d'énergie acoustique. Des études approfondies permettraient une avancée sur la détermination de la fraction de l'énergie élastique stockée qui est réellement libérée sous la forme d'énergie acoustique. Il pourrait également être envisagé l'emploi de capteurs piézoélectriques en PVDF qui présentent l'avantage d'être peu résonnants, ce qui signifie qu'ils modifient peu la forme des signaux détectés. L'inconvénient majeur est que leur sensibilité est très faible comparée aux capteurs piézoélectriques en PZT.

Le suivi de la déformation plastique et de l'endommagement des matériaux a été réalisé dans cette thèse suivant la méthode de mesures au contact. Nous avons vu que cette méthode implique des problèmes en ce qui concerne le couplage entre les capteurs et le matériau. Afin de s'affranchir de ceux-ci, il serait intéressant de concevoir un dispositif expérimental permettant des mesures suivant la méthode en immersion dans l'eau. Ces mesures pourraient être effectuées en incidence normale et oblique. Ces mesures donneraient la possibilité notamment de suivre l'évolution des paramètres US des ondes longitudinales et transversales en fonction de la déformation des matériaux. Ainsi, nous pourrions déterminer expérimentalement l'évolution du module d'Young. De même, ces mesures pourraient également être réalisées dans une gamme fréquentielle plus élevée que celle de nos investigations afin de travailler avec des signaux de longueur d'onde plus petite ce qui permettrait éventuellement d'être plus précis sur l'amorçage des mécanismes de plasticité et d'endommagement au sein des matériaux. Notons que des mesures US en immersion dans l'eau ont été tentées au cours de cette thèse, et le comportement des ondes longitudinales était similaire à celui présenté dans ce manuscrit.

Enfin, il faudrait envisager de plus amples investigations sur l'étude de l'initiation de la déformation plastique et l'endommagement sur d'autres polymères semi-cristallins à l'aide des techniques de contrôle US et d'EA. En effet, nous avons mené essentiellement nos travaux sur le PE car c'est le polymère semi-cristallin le plus étudié et donc par conséquent le plus connu. Nous avons effectué qu'un petit nombre d'essai sur un PP et un PVDF qui ont permis de valider quelques comportements observés sur le PE mais des études plus approfondies permettraient peut-être de généraliser nos résultats.

REFERENCES

- [ADD06] Addiego, F.; Dhaoun, A.; G'Sell, C.; Hiver, J.M. *Characterization of volume strain at large deformation under uniaxial tension in high-density Polyethylene*. Polymer, **47**, 2006, 4387-4399.
- [AHM91] Ahmed, S.; Thompson, R.B. *Propagation of Elastic Waves in Equiaxed Iron Polycrystals with Aligned [001] Axes*. Review of Progress in Quantitative Nondestructive Evaluation, **10B**, 1991, 1999-2005.
- [AMA06] Amalou, Z. *Contribution à l'étude de la structure semi-cristalline des polymères à chaînes semi-rigides*. Thèse de Doctorat, ULB Bruxelles, 2006.
- [BAR03] Bar, H.N.; Bhat, M.N.; Murthy, C.R.L. *Identification of failure modes in GFRP using PVDF sensors: ANN approach*. Composites Structures, **65**, 2004, 231-237.
- [BEN99] Benmedakhene, S.; Kenane, M.; Benzeggagh, M.L. *Initiation and growth of delamination in glass/epoxy composites subjected to static and dynamic loading by acoustic emission monitoring*. Composites Science and Technology, **59**, (2), 1999, 201-208.
- [BER13] Berkova, K.M. *Processing, structure and properties of composites based on material fillers and stereoregular polyolefins: Environmentally benign concept*. Thèse de Doctorat, University in Zlin, 2013.
- [BER95] Berkovits, A.; Fang, D. *Study of fatigue crack characteristics by acoustic emission*. Engineering Fracture Mechanics, **51**, (3), 1995, 401-409.
- [BET82] Betteridge, D.; Cridland, J.V.; Lilley, T.; Shako, N.R.; Cudby, M.E.A.; Wood, D.G.M. *Acoustic emission and e.s.r studies of polymers under stress*. Polymer, **23**, 1982, 178-184.
- [BET83] Betteridge, D.; Cridland, J.V.; Lilley, T.; Shako, N.R.; Cudby, M.E.A.; Wood, D.G.M. *Analysis of acoustic emissions from polymers*. Polymer, **24**, 1983, 1206-1212.
- [BLA10] Blaise, A.; Baravian, C.; Andre, S.; Dillet, J.; Michot, L.J.; Mokso, R. *Investigation of the mesostructure of a mechanically deformedhdpe by synchrotron microtomography*. Macromolecules, **43**, 2010, 8143-8152.
- [BOD11] Bodian, P.A. *Propagation des ultrasons en milieu hétérogène et anisotrope : Application à l'évaluation des propriétés d'élasticité et d'atténuation d'aciers moulés par centrifugation et de soudure en Inconel*. Thèse de Doctorat, INSA de Lyon, 2011.
- [BOH00] Bohse, J. *Acoustic emission characteristics of micro-failure processes in polymer blends and composites*. Composites Science and Technology, **60**, 2000, 1213-1226.
- [BOW74] Bowden, P.W.; Young, R.J. *Deformation mechanisms in crystalline polymers*. Journal of Materials Science, **9**, (12), 1974, 2034-2051.

- [BUN39] Bunn, C.W. *The crystal structure of long-chain normal paraffin hydrocarbons. The shape of CH₂ group*. Transactions of the Faraday Society, **35**, 1939, 482-491.
- [BUT97] Butler, M.F.; Donald, A.M.; Ryan, A.J. *Time resolved simultaneous small- and wide-angle X-ray scattering during Polyethylene deformation: I. Cold drawing of ethylene-[alpha]-olefin copolymers*. Polymer, **38**, (22), 1997, 5521-5538.
- [BUT98] Butler, M.F.; Donald, A.M.; Ryan, A.J. *Time resolved simultaneous small- and wide-angle X-ray scattering during Polyethylene deformation: II. Cold drawing of linear polyethylene*. Polymer, **39**, 1998, 39-52.
- [CAS00] Castagnet, S.; Girault, S.; Gacougnolle, J.L.; Dang, P. *Cavitation in strained Polyvinylidene fluoride: mechanical and X-ray experimental studied*. Polymer, **41**, (20), 2000, 7523-7530.
- [CAZ05] Cazenave, J. *Sur le compromis rigidité/durabilité du Polyéthylène haute densité en relation avec la structure de chaîne, la microstructure et la topologie moléculaire issues de la cristallisation*. Thèse de Doctorat, INSA Lyon, 2005.
- [CHE09] Chen, Y.J. *Relationship between Ultrasonic Characteristics and Relative Porosity in Al and Al-XSi Alloys*. Materials Transactions, **50**, (9), 2009, 2308-2313.
- [CHE95] Cheng, S.Z.D.; Janimak, J.J.; Rodriguez, J. *Crystalline structures of polypropylene homo- and copolymers*, In: *Polypropylene: Structure and morphology*. 1ère édition, Chapman & Hall, 1995.
- [CHO85] Choy, C.L.; Leung, W.P. *Elastic moduli of ultradrawn Polyethylene*. Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics, **23**, 1985, 1759-1780.
- [COL96] Coleman, A.J.; Choi, M.J.; Saunders, J.E. *Detection of acoustic emission from cavitation in tissue during clinical extracorporeal lithotripsy*. Ultrasound in Medicine & Biology, **22**, (8), 1996, 1079-1087.
- [CRI89] Crist, B.; Fisher, C.J.; Howard, P.R. *Mechanical properties of model Polyethylenes: tensile modulus elastic and yield stress*. Macromolecules, **22**, (4), 1989, 1709-1718.
- [DAR93] Darras, O.; Seguela, R. *Surface free energy of the chain-folding crystal faces of ethylene-butene random copolymers*. Polymer, **34**, (14), 1993, 2946-2950.
- [DAT78] Datta, P.K.; Pethrick, R.A. *Scanning electron microscopy and ultrasonic studies of drawn polypropylenes*. Polymer, **19**, 1978, 145-148.
- [DAV62] Davidse, P.D.; Waterman, H.I.; Westerdijk, J.B. *Sound velocity and Young's modulus in Polyethylene*. Journal of Polymer Science, **59**, 1962, 389-400.
- [DAV88] Davis, G.T.; Wang, T.T.; Herbert, J.M. *The applications of ferroelectric polymers*. Glasgow: Blackie, Glass AM editors, 1988.

[DEG71] De Gennes, P.G. *Reptation of a polymer chain in the presence of fixed obstacles*. Journal of chemical physics, **55**, (2), 1971, 572-579.

[DEG95] De Groot, P.J.; Wijnen, P. A.M.; Janssen, R.B.F. *Real-time frequency determination of acoustic emission for different fracture mechanisms in carbon/epoxy composites*. Composites Science and Technology, **55**, 1995, 405-412.

[DEM10] De Maria, I.M.; Sarasini, F. *Use of PVDF as acoustic sensor for in situ monitoring of mechanical behaviour of glass/epoxy laminates*. Polymer Testing, **29**, 2010, 749-758.

[DES05] Deschanel, S. *Dynamique des précurseurs de la rupture des matériaux hétérogènes: application aux mousses polymères vitreuses*. Thèse de Doctorat, INSA Lyon, 2005.

[DOR80] Dornfeld, D.A.; Kannatey-Asibu, E. *Acoustic emission during orthogonal metal cutting*. International Journal of Mechanical Sciences, **22**, (5), 1980, 285-296.

[DUB96] Dubuget, M. *Evaluation non destructive des matériaux par ultrasons : Caractérisation de l'état initial et suivi sous charge des propriétés d'élasticité linéaire et non linéaire d'alliages d'Aluminium*. Thèse de Doctorat, INSA Lyon, 1996.

[DUN68] Dunegan, H.L.; Harris, D.O.; Tatro, C.A. *Fracture analysis by use of acoustic emission*. Engineering Fracture Mechanics, **1**, (1), 1968, 105-122.

[ELM01] El Mohajir, B.E.; Heymans N. *Changes in structural and mechanical behaviour of PVDF with processing and thermomechanical treatments. 1.Change in structure*, Polymer, **42**, 2001, 5661-5667.

[FLO78] Flory, P.J.; Yoon, D.Y. *Molecular morphology in semicrystalline polymers*. Nature, **272**, 1978, 226-229.

[GAL03] Galeski, A. *Strength and toughness of crystalline polymer systems*. Progress in Polymer Science, **28**, 2003, 1643-1699.

[GAL87] Galeski, A.; Koenczoel, L.; Piorkowska, E.; Baer, E. *Acoustic emission during polymer crystallization*. Nature, **325**, (1), 1987, 40-41.

[GAL90] Galeski, A.; Koenczoel, L.; Piorkowska, E.; Baer, E. *Acoustic emission during crystallization of polymers*. Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics, **28**, 1990, 1171-1186.

[GAU81] Gaur, U.; Wunderlich, B. *Heat capacity and other thermodynamic properties of linear macromolecules. IV. Polypropylene*. Journal of Physical Chemistry, **10**, (4), 1981, 1051-1064.

[GOR91] Gorman, M.R. *Plate wave acoustic emission*. Journal of Acoustical Society of America, **90**, (1), 1991, 358-364.

- [GSE92] G'Sell, C.; Hiver, J.M.; Dahoun, A.; Souahi, A. *Video-controlled tensile testing of polymers and metals beyond the necking point*. Journal of Materials Science, **27**, (18), 1992, 5031-5039.
- [GSE94] G'Sell, C.; Dahoun, A. *Evolution of microstructure in semi-crystalline polymers under large plastic deformation*. Materials Science and Engineering, **175**, 1994, 183-199.
- [GRA76] Grabec, I.; Peterlin, A. Acoustic emission of a crazing polymer. Journal of Polymer Science: Polymer Physics Edition, **14**, (4), 1976, 651-661.
- [GRE99] Gregorio, R.JR.; Uneno, E.M. *Effect of crystalline phase, orientation and temperature on the dielectric properties of poly(vinylidene fluoride) (PVDF)*. Journal of Materials Science, **34**, 1999, 4489-4500.
- [GUN05] Guney, H.Y. *Elastic properties and mechanical relaxation behaviors of PVDF (Poly(vinylidene fluoride)) at temperature between -20 and 100°C and at 2 MHz ultrasonic frequency*. Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics, **43**, 2005, 2862-2873.
- [HAM74] Hamstad, M. A.; Mukherjee, A. K. *The dependence of acoustic emission on strain rate in 7075-T6 aluminum*. Experimental Mechanics, **14**, (1), 1974, 33-41.
- [HAS72] Hasegawa, R.; Takahashi, Y.; Chatani, Y.; Tadokoro, H. *Crystal structures of three crystalline forms of PVDF*. Polymer, **3**, (5), 1972, 600-610.
- [HAS03] Haselbach, W.; Lauke, B. *Acoustic emission of debonding between fibre and matrix to evaluate local adhesion*. Composites Science and Technology, **63**, 2003, 2155-2162.
- [HAU95] Haudin, J.M.; G'Sell, C. *Mécanismes microscopiques de déformation des polymères semicristallins. Introduction à la mécanique des polymères*. Institut National polytechnique de Lorraine, Nancy, 1995, 251-273.
- [HIK56] Hikata, A.; Truell, R.; Granato, A.; Chick, B.; Lücke, K. *Sensitivity of ultrasonic attenuation and velocity changes to plastic deformation and recovery in Aluminum*. Journal of Applied Physics, **27**, 1956, 396-404.
- [HIK62] Hikata, A.; Chick, B.; Elbaum, C.; Truell, R. *Ultrasonic attenuation and velocity data on aluminum single crystals as a function of deformation and orientation*. Acta Metallurgica, **10**, (4), 1962, 423-429.
- [HIR86] Hirsekorn, S. *Directional dependence of ultrasonic propagation in textured polycrystals*. Journal of the Acoustical Society of America, **79**, (5), 1986, 1269-1279.
- [HUG02] Huguet, S.; Godin, N.; Gaertner, R.; Salmon, L.; Villard, D. *Use of acoustic emission to identify damage modes in glass fibre reinforced polyester*. Composites Science and Technology, **62**, 2002, 1433-1444.
- [HUL85] Hull, D.R.; Kautz, H.E.; Vary, A. *Measurement of ultrasonic velocity using phase-slope and cross-correlation methods*. Materials Evaluation, **43**, (11), 1995, 1455-1460.

- [HUM09] Humbert, S. *Influence de la topologie moléculaire et de la microstructure sur les propriétés mécaniques des Polyéthylènes*. Thèse de Doctorat, INSA Lyon, 2009.
- [HUM10a] Humbert, S.; Lame, O.; Chenal, J.M.; Rochas, C.; Vigier, G. *New insight on initiation of cavitation in semicrystalline polymers: In-situ SAXS measurements*. *Macromolecules*, **43**, 2010, 7212-7221.
- [HUM10b] Humbert, S.; Lame, O.; Chenal, J.M.; Rochas, C.; Vigier, G. *Small strain behavior of Polyethylene: In situ SAXS measurements*. *Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics*, **48**, 2010, 1535-1542.
- [HOF97] Hoffman, J.D.; Miller, R.L. *Kinetic of crystallization from the melt and chain folding in Polyethylene fractions revisited: theory and experiment*. *Polymer*, **38**, (13), 1997, 3151-3212.
- [HSU81] Hsu, H.N.; Breckenridge, F.R. *Characterization and calibration of acoustic-emission sensors*. *Materials Evaluation*, **39**, 1981, 60-68.
- [HSU89] Hsu, T.C.; Geil, P.H. *Deformation and transformation mechanisms of PVDF*. *Journal of Materials Science*, **24**, 1989, 1219-1232.
- [JEO95] Jeong, H.; Hsu, D.K. *Experimental analysis of porosity-induced ultrasonic attenuation and velocity change in carbon composites*. *Ultrasonics*, **33**, (3), 1995, 195-203.
- [KAY95] Kaye, G.W.C.; Laby, T.H. *Tables of Physical and Chemical constants*. 16th edition, London: Longmans, Green and Co, 1995, 611.
- [KIE76] Kiesewetter, N.; Schiller, P. *The acoustic emission from moving dislocations in aluminium*. *Physica Status Solidi*, **38**, (2), 1976, 569-576.
- [KOB03] Kobayashi, M.; Tang, S.; Miura, S.; Iwabuchi, K.; Oomori, S.; Fujiki, H. *Ultrasonic nondestructive material evaluation method and study on texture and cross slip effects under simple and pure shear states*. *International Journal of Plasticity*, **19**, 2003, 771-804.
- [KOE86] Koenczoel, L.; Hiltner, A.; Baer, E. *Crazing and fracture in polystyrene studied by acoustic emission*. *Journal Applied Physics*, **60**, 1986, 2651-2654.
- [KRO02] Krofta, J.; Prevorsevsky, Z.; Blahacek, M.; Raab, M. *Acoustic emission during structures changes in semi-crystalline polymers*. *Journal of Acoustic Emission*, **20**, 2002, 274-284.
- [LEV97] Lévesque, D.; Legros, N.; Abdellah, A. *Ultrasonic determination of mechanical moduli of oriented semicrystalline polymers*. *Polymer Engineering and Science*, **37**, (11), 1997, 1833-1844.
- [LI01] Li, D.; Garmestani, H.; Kalidindi, S.R.; Alamo, R. *Crystallographic texture evolution in high density Polyethylene during uniaxial tension*. *Polymer*, **42**, 2001, 4903-4913.

- [LI98] Li, J.X.; Cheung, W.L. *On the deformation mechanisms of β -PP: I: Effect of necking on β -PP crystals*. Polymer, **39**, (26), 1998, 6935-6940.
- [LIN94] Lin, L.; Argon, A.S. *Structure and plastic deformation of polyethylene*. Journal of Materials Science, **29**, (2), 1994, 294-323.
- [MAI12] Maillet, E.; Godin, N.; R'Mili, M.; Reynaud, P.; Lamon, J.; Fantozzi, G. *Analysis of acoustic emission energy release during static fatigue tests at intermediate temperatures on ceramic matrix composites: Towards rupture time prediction*. Composites Science and Technology, **72**, 2012, 1001-1007.
- [MAI14] Maillet, E.; Godin, N.; R'Mili, M.; Reynaud, P.; Fantozzi, G.; Lamon, J. *Damage monitoring and identification in SiC/SiC minicomposites using combined acousto-ultrasonics and acoustic emission*. Composites: Part A, **57**, 2014, 8-15.
- [MAE98] Maes, C.; Van Moffaert, A.; Frederix, H.; Strauven, H. *Criticality in creep experiments on cellular glass*. Physical Review B, **57**, 1998, 4987-4990.
- [MAL09] Maleki, M.; Hasheminejad, S.M. *Elastic wave scattering in semi-crystalline polymers*. International Journal of Engineering Science, **47**, 2009, 767-776.
- [MAR69] Markham, M.F. *Measurement of the elastic constants of fibre composites by ultrasonics*. Composites, **1**, (2), 1969, 145-149.
- [MON85] Monasse, B.; Haudin, J.M. *Growth transition and morphology change in polypropylene*. Colloid and Polymer Science, **263**, 1985, 822-831.
- [MUR00] Murakami, H. *Change in free volume of polyvinylidene fluoride*. Radiation Physics and Chemistry, **58**, 2000, 531-533.
- [NAK73] Nakagawa, K.; Ishida, Y. *Annealing effects in poly(vinylidene fluoride) as revealed by specific volume measurements, differential scanning calorimetry, and electron microscopy*. Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics, **11**, 1973, 2153-2171.
- [NIT91] Nitta, K.H.; Tanaka, A. *Ultrasonic velocity and attenuation of polymeric solids under oscillatory deformation. III: Drawn films of high density and linear low density Polyethylene and their blends*. Polymer Engineering and Science, **31**, (13), 1991, 988-991.
- [NOR77] North, A.M.; Pethrick, R.A.; Phillips, D.W. *High-frequency ultrasonic studies of Poly(ethylene), Poly(propylene) and Poly(vinyl chloride)*. Macromolecules, **10**, (5), 1977, 992-996.
- [ODN81] O'Donnell, M.; Jaynes, E.T.; Miller, J.G. *Kramers-Kronig relationship between ultrasonic attenuation and phase velocity*. Journal of Acoustical Society of America, **69**, (3), 1981, 696-701.
- [OR00] Or, S.W.; Chan, H.L.W.; Choy, C.L. *P(VDF-TrFE) copolymer acoustic emission sensors*. Sensors and Actuators, **80**, 2000, 237-241.

- [PAL95] Palanichamy, P.; Joseph, A.; Jayakumar, T.; Baldev, R. *Ultrasonic velocity measurements for estimation of grain size in austenitic stainless steel*. NDT & E International, **28**, (3), 1995, 179-185.
- [PAR05] Park, J.M.; Kong, J.W.; Kim, D.S.; Yoon, D.J. *Nondestructive damage detection and interfacial evaluation of single-fibers/epoxy composites using PZT, PVDF and P(VDF-TrFE) copolymer sensors*. Composites Science and Technology, **65**, 2005, 241-256.
- [PAS75] Pascual, R.; Ahlers, M.; Rapacioli, R.; Arneodo, W. *Acoustic emission and the martensitic transformation of β brass*. Scripta Metallurgica, **9**, (1), 1975, 79-84.
- [PAW05] Pawlak, A.; Galeski, A. *Plastic deformation of crystalline polymers: The rôle of cavitation and crystal plasticity*. Macromolecules, **38**, (23), 2005, 9688-9697.
- [PAW07] Pawlak, A. *Cavitation during tensile deformation of high-density Polyethylene*. Polymer, **48**, (5), 2007, 1397-1409.
- [PAW08] Pawlak, A.; Galeski, A. *Cavitation during tensile deformation of Polypropylene*. Macromolecules, **41**, (8), 2008, 2839-2851.
- [PAW13] Pawlak, A.; Rozanski, A.; Galeski, A. *Thermovision studies of plastic deformation and cavitation in Polypropylene*. Mechanics of Materials, **67**, 2013, 104-118.
- [PAW14] Pawlak, A.; Galeski, A.; Rozanski, A. *Cavitation during deformation of semicrystalline polymers*. Progress in Polymer Science, **39**, 2014, 921-958.
- [PET75] Peterlin, A. *Plastic-deformation of polymers with fibrous structure*. Colloid Polymer Science, **253**, 1975, 809-823.
- [PET78] Petermann, J.; Schultz, J.M. *Lamellar separation during the deformation of high-density Polyethylene*. Journal of Materials Science, **13**, (1), 1978, 50-54.
- [PLO06] Ploix, M.A. *Étude de l'atténuation des ondes ultrasonores. Application au contrôle non destructif des soudures en acier inoxydable austénitique*. Thèse de Doctorat, INSA Lyon, 2006.
- [QIA83] Qian, R.; Wang, T.; Shen, J. *Acoustic emission during stretching of polymers*. Chinese Journal of Polymer Science, **2**, 1983, 169-175.
- [RAU02] Rault, J. *Les polymères solides*. Toulouse: Edition CEPADUES, 2002.
- [RON06] Ronkay, F.; Czigany, T. *Cavity formation and stress-oscillation during the tensile test of injection molded specimens made of PET*. Polymer Bulletin, **57**, 2006, 989-998.
- [ROT78] Rotem, A. *Effect of strain rate on acoustic emission from fibre composites*. Composites, **9**, (1), 1978, 33-36.
- [ROY96] Dieulesaint, E.; Royer, D. *Ondes élastiques dans les solides. Propagation libre et guidée*. Paris: Masson, 1996.

- [SAJ99] Sajkiewicz, P.; Wasiak, A.; Gocłowski, Z. *Phase transitions during stretching of poly(vinylidene fluoride)*. *European Polymer Journal*, **35**, 1999, 423-429.
- [SCH06] Schneider, K.; Trabelsi, S.; Zafeiropoulos, N.E.; Davies, R.; Riekel, C.; Stamm, M. *The study of cavitation in HDPE using time resolved synchrotron X-ray scattering during tensile deformation*. *Macromolecules*, **236**, (1), 2006, 241-248.
- [SCH59] Schuyer, J. *Sound velocity in Polyethylene*. *Journal of Polymer Science*, **36**, 1959, 475-483.
- [SCR85] Scruby, C.B. *Quantitative acoustic emission techniques*. *Nondestructive testing*, vol.8, chapter 4, London: Academic Press Inc., 1985, 146-154.
- [SCR90] Scruby, C.B.; Drain, L.E. *Laser Ultrasonics. Techniques and Applications*. Chapter3, Taylor & Francis Group, 1990, 101.
- [SHA08] Shaira, M.; Godin, N.; Guy, P.; Vanel, L.; Courbon, J. *Evaluation of the strain-induced martensitic transformation by acoustic emission monitoring in 304L austenitic stainless steel: Identification of the AE signature of the martensitic transformation and power-law statistics*. *Materials Science and Engineering A*, **492**, 2008, 392-399.
- [TAN89] Tanaka, A.; Nitta, K.H.; Onogi, S. *Ultrasonic velocity and attenuation of polymeric solids under oscillatory deformation: Apparatus and preliminary results*. *Polymer Engineering and Science*, **29**, (16), 1989, 1124-1130.
- [TAN91] Tanaka, A.; Nitta, K.H. *Ultrasonic velocity and attenuation of polymeric solids under oscillatory deformation. II: High density and linear low density Polyethylene and their blends*. *Polymer Engineering and Science*, **31**, (8), 1991, 571-576.
- [TAV92] Tavakoli, M.B.; Evans, J.A. *The effect of bone structure on ultrasonic attenuation and velocity*. *Ultrasonics*, **30**, (6), 1992, 389-395.
- [TOR01] Tordjeman, P.; Robert, C.; Marin, G.; Gerard, P. *The effect of α , β crystalline structure on the mechanical properties of polypropylene*. *European Physical Journal*, **4**, 2001, 459-465.
- [WON04] Wong, M.; Moyse, A.; Lee, F.; Sue, H.J. *Study of surface damage of polypropylene under progressive loading*. *Journal of Materials Science*, **39**, 2004, 3293-3308.
- [WU96] Wu, J. *Determination of velocity and attenuation of shear waves using ultrasonic spectroscopy*. *Journal Acoustical Society of America*, **99**, (5), 1996, 2871-2875.
- [WUN73] Wunderlich, B. *Macromolecular physics, vol.1: Crystal structure, morphology, defects*. New York: Academic Press, **388**, 1973.
- [XIO13] Xiong, B.; Lame, O.; Chenal, J.M.; Rochas, C.; Seguela, R.; Vigier, G. *In-situ SAXS study and modeling of the cavitation/crystal-shear competition in semi-crystalline polymers: Influence of temperature and microstructure in polyethylene*. *Polymer*, **54**, 2013, 5408-5418.

[YAM99] Yamaguchi, M.; Nitta K-H. *Optical and acoustical investigation for plastic deformation of isotactic Polypropylene/Ethylene-1-hexene copolymer blends*. Polymer Engineering and Science, **39**, (5), 1999, 833-840.

FOLIO ADMINISTRATIF

THÈSE SOUTENUE DEVANT L'INSTITUT NATIONAL
DES SCIENCES APPLIQUÉES DE LYON

NOM : CASIEZ

DATE de SOUTENANCE : 14/04/2015

Prénoms : Nicolas

TITRE : ETUDE DE L'INITIATION DE LA PLASTICITE ET DE L'ENDOMMAGEMENT
DE POLYMERES SEMI-CRISTALLINS PAR DES METHODES D'EVALUATION NON-
DESTRUCTIVES ULTRASONORES

NATURE : Doctorat

Numéro d'ordre : 2015ISAL0031

Ecole doctorale: Matériaux Lyon (ED34)

RESUME :

Les polymères semi-cristallins sont des matériaux très répandus dans notre vie quotidienne et sont utilisés dans une large gamme d'applications, généralement sous des sollicitations viscoélastiques. Par conséquent, nombreux sont les travaux de recherche qui ont été menés ces dernières années afin d'étudier leurs propriétés élastiques et leurs micro-mécanismes de plasticité ou d'endommagement apparaissant en leur sein à l'échelle locale (nano et micrométrique). Cependant, l'observation in situ de l'amorçage de ces mécanismes (cisaillement des cristallites, cavitation ou encore transformation martensitique) demeure problématique et requiert l'emploi d'équipements complexes. Dès lors, nous proposons d'utiliser des techniques d'analyse non destructives fondées sur la détection et la propagation d'ondes ultrasonores (US) afin d'obtenir de nouvelles informations sur l'initiation de la plasticité et de l'endommagement de polymères semi-cristallins. Plus précisément, nous avons utilisé les techniques de contrôle par ondes US et émission acoustique (EA) afin de caractériser la plasticité et l'endommagement de plusieurs Polyéthylènes (PE), d'un Polypropylène (PP) et d'un Polyfluorure de vinylidène (PVDF) lors d'essais de traction uniaxiale.

La technique de contrôle US a permis de montrer que l'atténuation US de différents types d'ondes (guidées et de volume) est élevée et augmente lorsque le taux de cristallinité du matériau diminue. Pour les ondes guidées, nous avons montré l'influence de la géométrie des éprouvettes ainsi que celle de la fréquence des ondes sur l'atténuation.

Lors d'un essai de traction, une importante modification des paramètres US est observée lors du passage dans le domaine plastique, traduisant l'évolution de l'état de la microstructure, en particulier celui du réseau cristallin. La formation de micro-cavités a un impact significatif sur l'atténuation des ondes. L'effet de l'orientation des chaînes macromoléculaires a également été mis en évidence.

L'activité acoustique des matériaux étudiés est faible mais il a été possible de vérifier que la majorité des signaux d'EA détectés proviennent bien des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement. L'effet de la vitesse de déformation est significatif et nous avons montré que la localisation de certains signaux est possible lorsque cette vitesse de déformation est élevée. L'activité acoustique présente trois phases au cours des essais de traction, ce qui nous a permis de proposer en conséquence un modèle de répartition des sources d'EA sur les éprouvettes. L'activité acoustique démarre toujours avant le seuil de plasticité montrant ainsi que des micro-mécanismes de plasticité et d'endommagement s'initient aux faibles déformations. La détection de signaux d'EA avant le seuil de plasticité dépend aussi du taux de cristallinité. Le nombre de signaux d'EA détectés ainsi que leur énergie augmentent avec le taux de cristallinité du matériau. Un critère de plasticité a donc été proposé. La corrélation entre les signaux d'EA et les mécanismes sous-jacents est complexe, cependant il semblerait que la cavitation, la rupture des lamelles cristallines ainsi que la transformation martensitique soient toutes trois à l'origine de la libération d'énergie acoustique.

MOTS-CLÉS : déformation plastique, émission acoustique, contrôle ultrasonore, atténuation

Laboratoire (s) de recherche : MATEIS et LVA de l'INSA de Lyon

Directeurs de thèse : LAME Olivier et DESCHANEL Stéphanie

Examineur : WEISS Jérôme

Rapporteurs : ANDRE Stéphane et MOYSAN Joseph